



Optimisation par simulation du couplage entre un réacteur sous-critique et sa source de spallation.

Application à un démonstrateur

Denis Kerdraon

► To cite this version:

Denis Kerdraon. Optimisation par simulation du couplage entre un réacteur sous-critique et sa source de spallation. Application à un démonstrateur. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG, 2001. Français. NNT: . tel-00000918

HAL Id: tel-00000918

<https://theses.hal.science/tel-00000918>

Submitted on 6 Dec 2001

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

T H E S E

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE

Spécialité : Energétique Physique

préparée à l'*Institut des Sciences Nucléaires de Grenoble*
dans le cadre de l'**Ecole Doctorale de Mécanique et Energétique**

présentée et soutenue publiquement

par

Denis KERDRAON

le 26 octobre 2001

Titre :

Optimisation par simulation du couplage entre un réacteur sous-critique et sa source de spallation. Application à un démonstrateur

Directeur de thèse : Roger Brissot

JURY

M.
M.
M.
M.
M.

Hubert Flocard, Président, Rapporteur
Paul Reuss, Rapporteur
Roger Brissot, Directeur de thèse
Daniel Heuer, Co-encadrant
Bernard Carlucc, Examineur

Remerciements

Je remercie tout d’abord Monsieur Joël CHAUVIN, directeur de l’Institut des Sciences Nucléaires (ISN) de Grenoble, pour m’avoir accueilli dans son laboratoire durant ces trois années de doctorat, ainsi que Messieurs Roger BRISSOT et Jean-Marie LOISEAUX qui m’ont permis d’effectuer ma thèse au sein du groupe “Réacteurs Hybrides”. Je remercie également Nicole COUTRIS et Georges BERTHOUD responsables de la formation doctorale Energétique Physique de l’Institut National Polytechnique de Grenoble (INPG) durant cette période. Cette thèse s’est déroulée sous la direction de Roger BRISSOT et Daniel HEUER, je les remercie vivement pour leur encadrement et leur disponibilité.

Je souhaiterais également remercier Monsieur Hubert FLOCARD, d’avoir accepté le double rôle de président du jury et de rapporteur, et Monsieur Paul REUSS, pour avoir accepté d’être rapporteur, pour leurs remarques enrichissantes. Je remercie également Monsieur Bernard CARLUEC, qui a accepté d’être membre du jury et dont les idées lors des réunions à l’ISN ont orienté en partie mon travail.

Je remercie bien entendu les membres du groupe que j’ai connu au cours de ces trois années pour leur bonne humeur, leur aide précieuse et leur encouragement ; Annick BILLEBAUD (merci pour les relectures et les précieux conseils), Maëlle KERVENO, Eric LIATARD (merci pour les dernières relectures), Alain GIORNI, Christian LE BRUN, Olivier MEPLAN, Elsa MERLE, Hervé NIFENECKER et Jean-Bernard VIANO. Un merci particulier à Sylvain DAVID pour ces conseils et à Elisabeth HUFFER pour sa disponibilité. Je remercie vivement les doctorants qui ont partagé mon sort, Luc PERROT qui a testé ma patience et qui m’a souvent dépanné dans la manipulation de fichiers, Philippe WACHTARCZYK, Alexis NUTTIN, Fabien PERDU et Joachim VOLLAIRE ainsi que l’ensemble des stagiaires qui ont évolué au sein du groupe. De même, je remercie l’ensemble des personnes du groupe cœur pour un démonstrateur que j’ai eu l’occasion de cotoyer lors de nos réunions et en particulier Guillaume RITTER du Commissariat à l’Energie Atomique et Denis VERRIER de la société Framatome ANP.

Enfin, je remercie grandement ma famille, et surtout mes parents, ainsi que mes amis pour m’avoir soutenu et motivé en toutes occasions et l’ensemble du collectif des doctorants de l’ISN.

Table des matières

1	Description d'un réacteur hybride et du démonstrateur étudié	9
1.1	Motivations pour un démonstrateur	9
1.1.1	Rappels sur les déchets nucléaires : cas de la France	9
1.1.2	Introduction aux réacteurs hybrides	17
1.2	Description d'un réacteur hybride	21
1.2.1	Rappels de neutronique	21
1.2.2	Analyse du couplage source-cœur	23
1.3	Présentation du démonstrateur étudié	30
1.3.1	Le module de spallation	30
1.3.2	Les assemblages du cœur	32
1.3.3	Le combustible de référence	34
1.3.4	Phases de démonstration	35
1.4	Conclusions	35
2	Optimisation neutronique d'un réacteur hybride de démonstration et caractérisation des flux et des débits de dose	37
2.1	Modélisation détaillée	37
2.1.1	Optimisation du pas des tubes hexagonaux (TH)	38
2.1.2	Optimisation de la proportion de caloporteur (He) à l'intérieur des tubes hexagonaux (TH)	38
2.2	Optimisation géométrique et influence des matériaux	41
2.2.1	Optimisation du rapport hauteur sur diamètre du cœur	41
2.2.2	Influence du type de caloporteur	51
2.3	Optimisation du couplage source - cœur	54
2.3.1	Optimisation de la cible	54
2.3.2	Etude d'un amplificateur de source	59
2.3.3	Application à un réacteur hybride	62
2.4	Caractérisation des flux aux interfaces et des débits de dose	69

2.4.1	Optimisation du calcul	69
2.4.2	Caractérisation des flux à l'intérieur de l'enceinte	71
2.4.3	Caractérisation des flux et débits de dose à l'extérieur de l'enceinte	72
2.5	Conclusions	76
3	Calculs d'évolution des combustibles du démonstrateur	77
3.1	Chargement en combustible d'oxyde d'uranium et de plutonium (MOX (U/Pu))	78
3.1.1	Evolution de la réactivité	78
3.1.2	Influence de la température du combustible: Effet Doppler	85
3.2	Chargement en combustible oxyde à base d'Actinides Mineurs	87
3.2.1	Préambule	87
3.2.2	Recherche d'une réactivité stable	92
3.2.3	Coeur mixte d'assemblages de combustibles oxydes d'actinides mineurs et de MOX (U/Pu)	99
3.3	Chargement en combustible oxyde thorium-plutonium MOX (Th/Pu)	106
3.4	Conclusions	111
4	Transmutation des produits de fission dans le réflecteur	113
4.1	Rappels sur la transmutation	113
4.1.1	Demi-vie effective	113
4.1.2	Neutrons disponibles	114
4.2	Transmutation du ^{99}Tc	115
4.2.1	Optimum du taux de capture	116
4.2.2	Influence du ralentissement	118
4.2.3	Configuration sans crayon	120
4.2.4	Configuration avec crayons	124
4.2.5	Influence sur le k_{eff}	126
4.2.6	Détermination de l'équilibre	126
4.3	Transmutation de l'iode ^{129}I	128
4.3.1	Diffusion de l'iode ^{129}I	128
4.3.2	Transmutation de l' ^{129}I	129
4.3.3	Assemblages de $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$	130
4.4	Conclusions	133
5	Du démonstrateur vers un réacteur de puissance	135
5.1	Critères physiques	135
5.1.1	Solutions de l'équation de la diffusion pour un milieu sous-critique	135
5.1.2	Facteur de forme	137

5.1.3	Géométrie du cœur et méthode de calcul utilisée	139
5.1.4	Evolution des flux	140
5.1.5	Calcul du facteur de multiplication infini (k_{∞})	143
5.1.6	Influence du niveau de sous-criticité	143
5.2	Amélioration du facteur de forme : solutions envisagées	146
5.2.1	Influence d'une zone tampon	146
5.2.2	Influence de zones de densités de combustible variables	148
5.3	Conclusions	150
6	Utilisation des réacteurs hybrides pour le démarrage d'une filière de réacteurs à sels fondus basée sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	153
6.1	Introduction	153
6.2	Première approche	155
6.2.1	Configuration initiale	155
6.2.2	Evolution des paramètres	158
6.3	Solution optimisée	163
6.3.1	Gestion par zone	163
6.3.2	Evolution de l'intensité	165
6.4	Conclusions	167
	Annexes	173
A	Outils de simulation	173
A.1	Le code MCNPX	173
A.1.1	Présentation générale	173
A.1.2	Modèles de spallation	174
A.2	Couplage avec le code d'évolution REM (Règles pour l'Evolution avec MCNPX)	175
A.2.1	Equations de Bateman	175
A.2.2	Méthode de résolution	176
A.2.3	Couplage	176
B	Etude analytique du système formé par deux coquilles couplées	178
C	Valeurs utilisées du coefficient de conversion $h^*(10)$	182

Introduction

La gestion des déchets nucléaires doit permettre d'en assurer le confinement et le stockage à l'aide de méthodes qui permettront de réduire au minimum les effets nocifs sur l'homme et son environnement à tout moment. Dans cette optique, le parlement a voté la loi du 30 décembre 91 [1] relative aux recherches sur la gestion des déchets nucléaires en vue d'explorer l'ensemble des solutions possibles. La recherche peut contribuer à réduire les incertitudes en améliorant notre compréhension des systèmes naturels et produits par l'homme. Préserver un grand nombre d'options diverses, dans le secteur énergétique, peut aider à éviter des perturbations quand l'une d'entre elles viendrait à manquer. En effet, le contexte énergétique mondial risque de se tendre dans le siècle débutant. Les projections, même si l'expérience montre que leur validité peut être contestée, conduisent à un doublement voir à un triplement en 2050 de la consommation mondiale d'énergie. A ce jour, 1.2 milliards d'habitants des pays développés, soit 20 % de la population mondiale, consomment 60 % des ressources énergétiques, alors que dans le même temps, les presque 5 autres milliards d'habitants n'en consomment que 40 %. Il apparaît clairement que cette répartition extrêmement déséquilibrée, que viendra encore augmenter la croissance démographique des pays pauvres, risque de provoquer de graves tensions. D'autre part, la raréfaction inéluctable des énergies fossiles ainsi que leur répartition inégale sur l'ensemble des continents vont obligatoirement engendrer une dégradation de la situation dans les décennies qui viennent. Pour le moment, tant qu'une énergie de substitution économiquement rentable et sans effets nocifs sur l'environnement n'est pas développée, le moyen le plus sûr d'obtenir de l'électricité en grande quantité sans émissions de gaz à effet de serre reste l'énergie nucléaire. Une notion essentielle que constitue la responsabilité envers les générations futures implique une préservation des ressources et de la qualité de notre environnement. Les déchets nucléaires, dont les périodes radioactives peuvent atteindre des durées de l'ordre du million d'années, nous imposent d'apporter les solutions nécessaires à leur bonne gestion. Dans cette optique, la loi du 30 décembre 91 sur les déchets nucléaires a été adoptée pour encadrer et définir les principaux axes de recherche à savoir la caractérisation de sites de stockage définitif en profondeur, l'entreposage en surface ou sub-surface et la séparation-transmutation des déchets. Notre travail s'inscrit dans ce cadre et porte sur la transmutation des déchets nucléaires par irradiation neutronique en réacteur au sein du groupe de recherche GEDEON (Gestion des DEchets par des

Options Nouvelles) regroupant le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), le Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS), Electricité de France (EDF) et la société Framatome ANP [2]. Pour ce faire, les systèmes hybrides qui ouvrent le champ des combustibles possibles apparaissent comme une solution particulièrement intéressante pour l'incinération des déchets et la surgénération. La première étape de leur développement est la définition d'un démonstrateur expérimental dont la simulation et l'optimisation font l'objet de ce travail.

Chapitre 1

Description d'un réacteur hybride et du démonstrateur étudié

Dans ce chapitre, nous rappellerons, dans un premier temps, les motivations principales qui concourent à développer les réacteurs hybrides, désignés également sous le sigle d'ADS (Accelerator Driven System), dans les décennies qui viennent. Ensuite, nous donnerons les caractéristiques physiques et neutroniques propres à ce type de réacteurs en comparaison des réacteurs critiques classiques et enfin nous décrirons le concept de démonstrateur proposé par la société Framatome ANP qui nous a servi de support pour nos investigations.

1.1 Motivations pour un démonstrateur

1.1.1 Rappels sur les déchets nucléaires : cas de la France

Le cycle du combustible

Le parc électro-nucléaire est constitué de 58 réacteurs de la filière REP (Réacteurs à Eau Pressurisée) et un réacteur (Phénix) de la filière RNR (Réacteurs à Neutrons Rapides) pouvant fournir une puissance totale brute de 62.9 GWé. Parmi cet ensemble, on trouve 34 réacteurs de type REP-900 MWé, 20 réacteurs de type REP-1300 MWé et 4 réacteurs (palier N4) de type REP-1450 MWé. La mise en fonctionnement du parc électro-nucléaire s'est réalisée à un rythme soutenu depuis 1977 comme l'indique la figure 1.1 représentative de l'évolution de la puissance brute installée en fonction du temps. Le combustible utilisé est un combustible d'oxyde d'uranium UOX dont l'enrichissement est de l'ordre de 3.5 % en ^{235}U . Pour valoriser une partie du plutonium issu du retraitement du combustible UOX, 20 réacteurs de type REP-900 MWé sont chargés en partie (30 % du cœur) en combustible d'oxyde mixte de plutonium et uranium MOX (U/Pu). Le combustible MOX (U/Pu) usagé n'est actuellement pas retraité et est donc stocké en piscine en attente d'une décision.

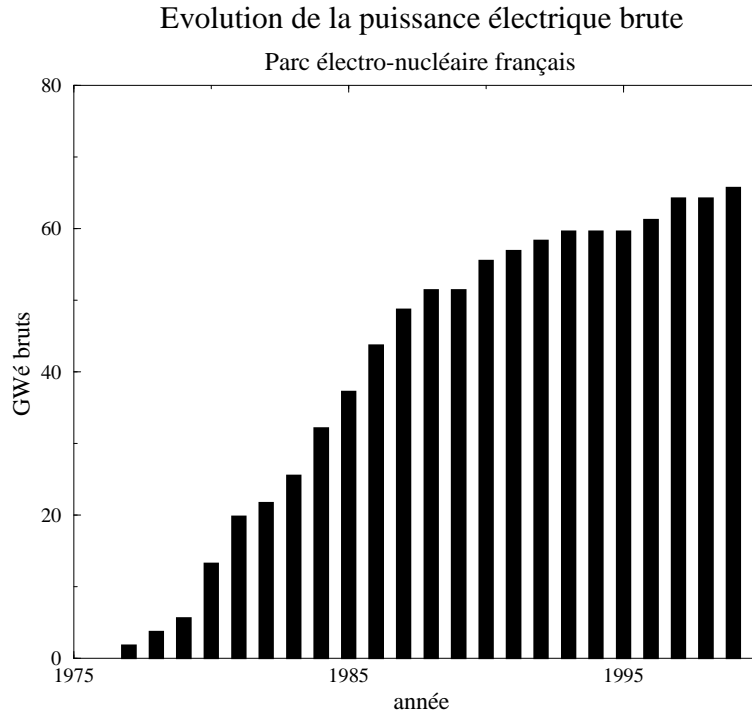


FIG. 1.1 – *Evolution de la puissance du parc électro-nucléaire français d’après la référence [4].*

Le cycle du combustible est illustré sur la figure 1.2 pour l’année 1999. Quelque 1200 tonnes de combustible irradié sont déchargées annuellement. Pour l’année 1999, sur ces 1200 tonnes, 850 tonnes de combustible UOX irradié sont retraitées et environ 300 tonnes de combustible UOX et une quarantaine de tonnes de combustible MOX (U/Pu) sont stockées dans l’attente d’un éventuel “retraitement différé” dans quelques dizaines d’années. Des études sont menées dans le cadre de la loi de 91 pour définir des sites d’entreposage de combustible usé [3]. Il semble nécessaire de définir à partir de quel délai un combustible usé doit être considéré en attente de retraitement dans une perspective à long terme ou comme un déchet en entreposage. Les 850 tonnes de combustible UOX qui seront retraitées, sont composées (en masse) de :

- 95.5 % d’uranium,
- 1 % de plutonium,
- 0.1 % d’actinides mineurs (AM)
- et 3.4 % de produits de fission (PF).

L’évolution prévisible des quantités cumulées de combustibles UOX et MOX entreposées est donnée sur la figure 1.3 jusqu’en 2045. A ce jour, les quantités entreposées de combustible UOX irradié représentent environ 10000 tonnes dans les piscines de l’usine COGEMA à La Hague et des sites de production d’EDF. Au delà, l’évolution de ce stock dépendra des choix effectués en matière de retraitement. En effet, plusieurs scénarios ont été envisagés [4] qui dépendent de la

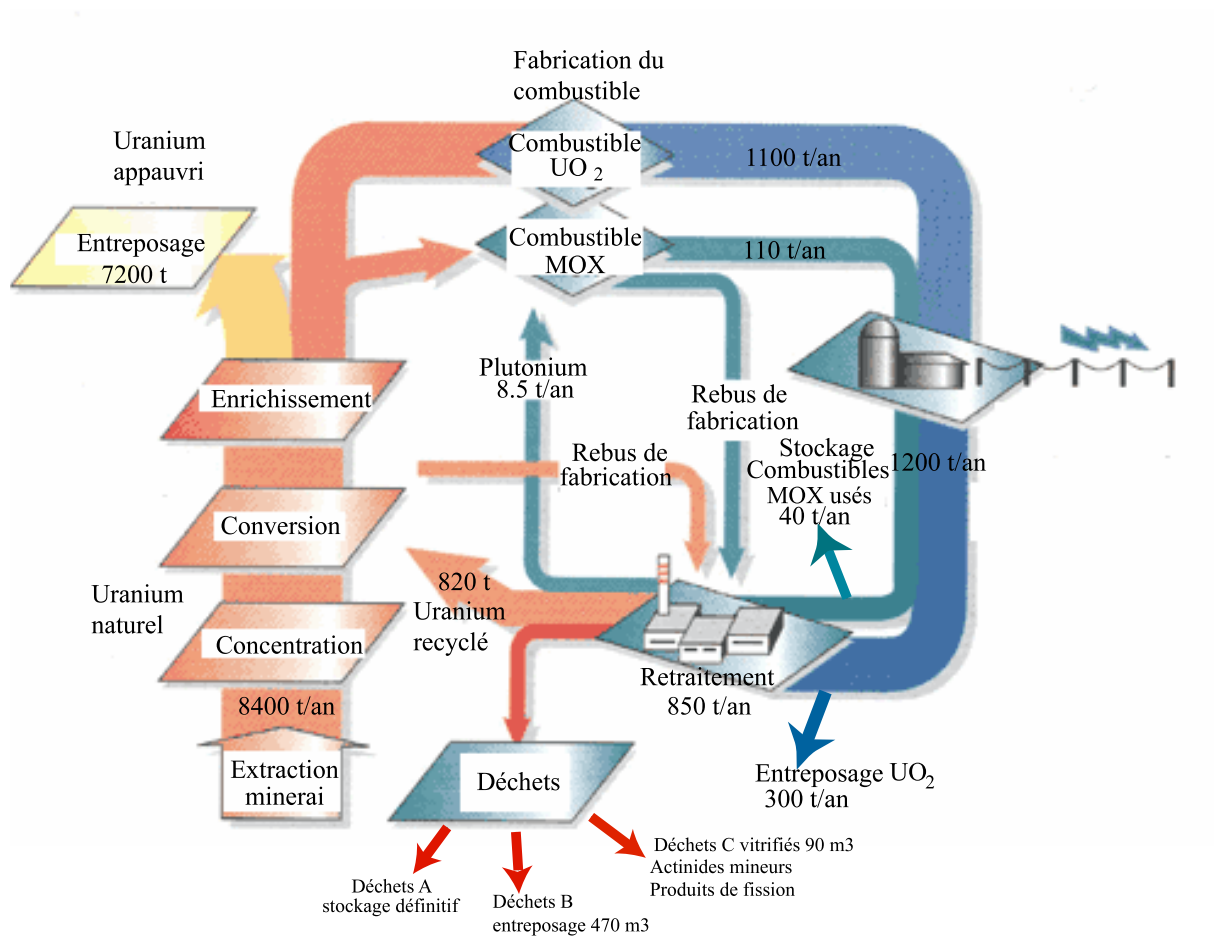


FIG. 1.2 – Cycle du combustible du parc électro-nucléaire français pour l'année 1999 pour une production de 390 TWh et un taux de combustion moyen de 33 GWj/t d'après [4].

durée de vie moyenne des réacteurs (des durées de vie moyennes du parc des centrales de 41 et 45 ans ont été envisagées) et de la stratégie de retraitement - recyclage (soit son arrêt en 2010 ou sa poursuite dans 20 ou 28 tranches de 900 MWé). Suivant ces scénarios, l'évolution des stocks de combustible UOX pourrait varier du simple au double en 2045 entre 18000 tonnes pour le scénario de poursuite du retraitement - recyclage dans 28 tranches de 900 MWé et une durée de vie moyenne des réacteurs de 45 ans et 36000 tonnes pour le scénario d'arrêt du retraitement - recyclage en 2010 associé à une durée de vie moyenne des réacteurs de 41 ans. Une récente étude réalisée par EDF, signalé dans [3], a montré que l'augmentation du taux de combustion permettrait de retrouver un équilibre entre le combustible déchargé et le combustible retraité à l'horizon 2015.

Les 10000 tonnes de combustible actuelles contiennent de l'ordre de 115 tonnes de plutonium constituées pour 100 tonnes du plutonium provenant du combustible UOX et pour 15 tonnes du combustible MOX. L'évolution de la quantité de plutonium contenue dans les combustibles entreposés en piscine est donnée sur la figure 1.4.

Les déchets nucléaires

Les déchets nucléaires sont divisés en quatre catégories selon deux critères à savoir leur activité et leur période radioactive :

- les déchets TFA, de Très Faible Activité α (quelques Bq/g) et à longue durée de vie,
- les déchets A, de faible et moyenne activité ne renfermant que des émetteurs β et γ à vie courte et moyenne (période inférieure à 30 ans) et une activité α inférieure à 370 Bq/g,
- les déchets B, de faible et moyenne activité renfermant des émetteurs de longue période et une activité α supérieure à 370 Bq/g,
- les déchets C, de haute activité contenant des quantités importantes de produits de fission, d'actinides et de produits d'activation.

Les déchets A sont stockés en surface dans des conteneurs en béton ou des fûts métalliques dans les centres de l'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs) sous surveillance durant une période de 300 ans. Les déchets B qui contiennent des émetteurs de longue période sont conditionnés dans des fûts en béton et représentent à ce jour un volume d'environ 8000 m³. L'évolution de ce volume est donné sur la figure 1.5. Ces déchets n'ont pas encore de solution définitive de stockage et rentrent dans le cadre de la loi de 1991. Les déchets C sont essentiellement composés des produits de fission et des actinides mineurs et sont conditionnés dans des verres borés contenus dans des conteneurs en acier de 150 litres. Ces conteneurs sont actuellement entreposés en surface sur les sites de La Hague et de Marcoule dans des silos ventilés. L'évolution du nombre de ces conteneurs est donnée sur la figure 1.5. A plus long terme, il est prévu de les stocker en profondeur (500 m) dans des couches géologiques

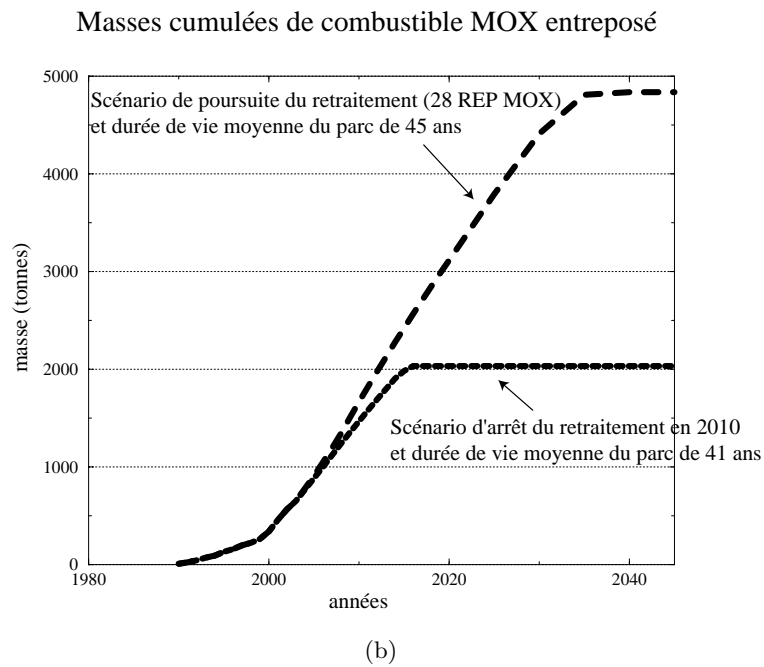
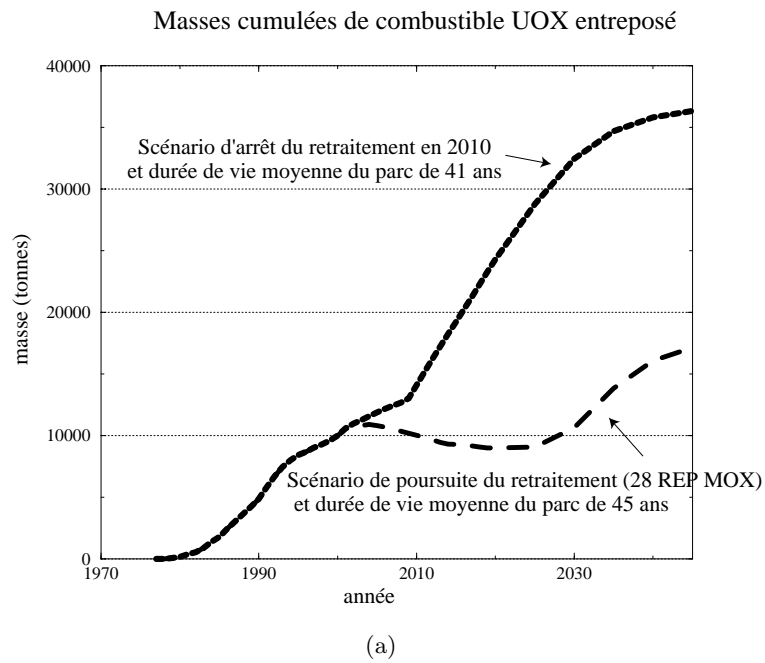


FIG. 1.3 – Evolution des quantités cumulées de combustibles UOX (a) et MOX (U/Pu) (b) entreposés du parc électro-nucléaire français d'après [4].

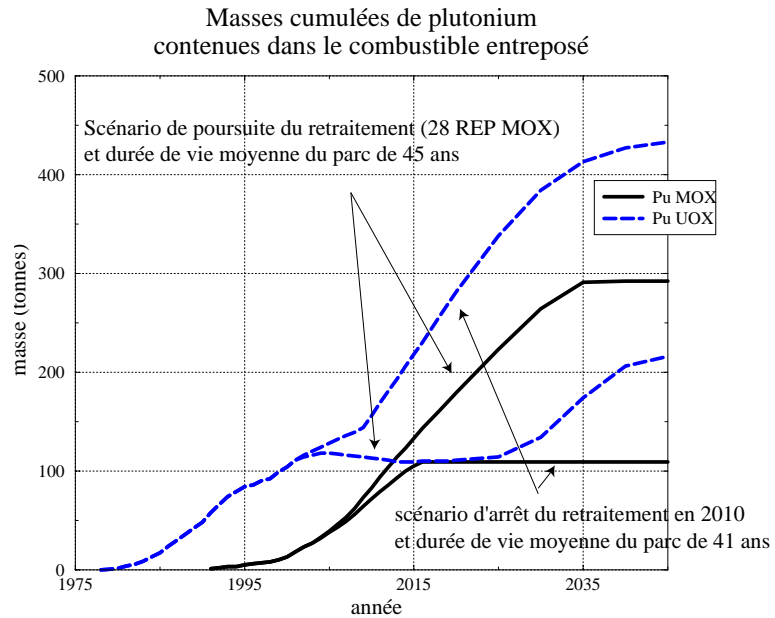


FIG. 1.4 – Evolution des quantités cumulées de plutonium contenu au sein des combustibles de type UOX et MOX entreposés d'après [4].

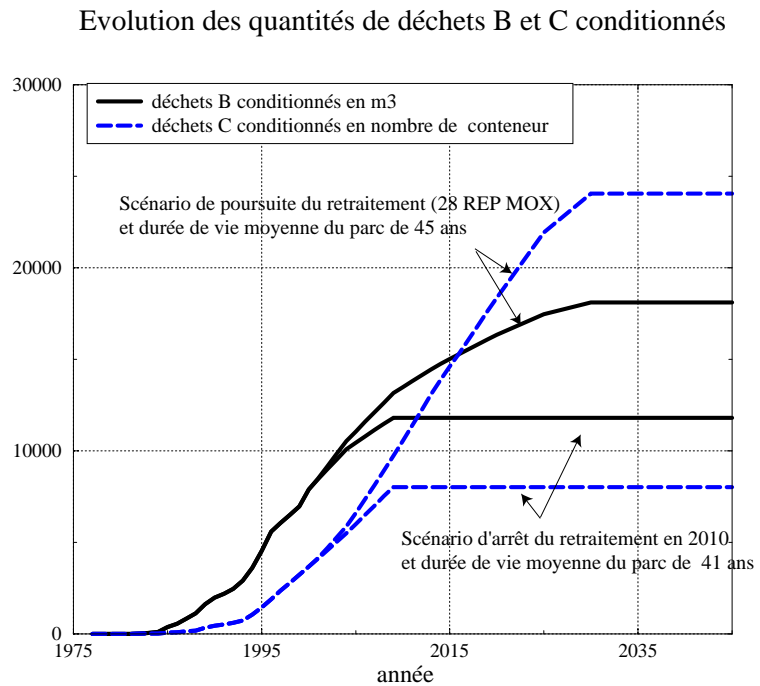
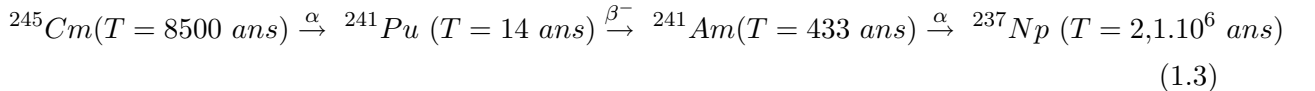
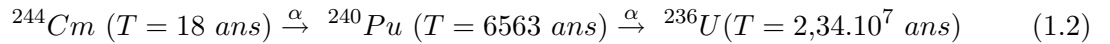
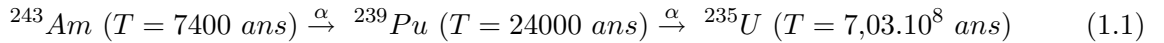


FIG. 1.5 – Evolution des quantités cumulées de déchets B et C conditionnés d'après [4].

stables. Tous les problèmes posés par le stockage en site profond, en particulier son acceptation par le public, ne sont pas encore résolus. Bien que la plupart des études montre que le risque résiduel est très faible à court et moyen terme, il est en revanche impossible d'assurer l'absence de risques à très long terme liée aux modifications géologiques. Cette constatation a rendu nécessaire les études de solutions alternatives telles que la séparation puis l'incinération des actinides par fission et la transmutation des produits de fission en éléments stables ou à durée de vie plus courte (de période radioactive inférieure à 30 ans) comme le préconise l'axe 1 de la loi de 1991. La séparation et la transmutation / incinération de la plus grande quantité d'isotopes permettraient d'en diminuer l'impact à long terme (au delà de 10000 ans) sur un stockage (toujours incontournable du fait des pertes au retraitement). L'impact à long terme du stockage est réduit suite à un volume de colis de déchets plus faible et par conséquent une chaleur résiduelle et une radiotoxicité potentielle à l'ingestion moindres [5]. La radiotoxicité considérée est une mesure du risque potentiel auquel serait soumis une personne dans une situation extrême sans aucune mesure de protection puisqu'elle est calculée en supposant qu'un homme adulte a ingéré tout le stock de matériau radioactif considéré même si cela est irréaliste. Seule la contamination par ingestion est retenue pour le grand public.

Les tableaux 1.1 et 1.2 indiquent les durées de vie et les quantités annuelles des principaux isotopes à vie longue ou à haute activité présents dans les déchets C issus du combustible irradié, déchargé puis retraité chaque année pour l'ensemble du parc électro-nucléaire (environ 1200 tonnes). Les principales chaînes de décroissance des actinides mineurs donnent les isotopes qui dominent à long terme dans un stockage. En simplifiant, on peut considérer les trois chaînes réduites suivantes pour comprendre l'évolution des actinides mineurs contenus dans les déchets :



Actuellement, le plutonium est mono-recyclé dans le combustible MOX (U/Pu). Le cas du plutonium est à part car il est considéré comme un déchet par certains et comme une ressource par d'autres notamment dans le cas de son utilisation comme l'élément fissile nécessaire au démarrage d'une filière uranium à neutrons rapides ou au thorium. Aujourd'hui, à l'aide du procédé PUREX (Pu-U Recovery EXtraction), 99 % des produits de fission, 99.7 % des actinides mineurs et 0.1 % du plutonium restent dans la solution à vitrifier après retraitement et sont destinés au stockage en profondeur. La stratégie d'incinération / transmutation nécessite une séparation poussée du combustible [17]. La mise au point d'un procédé de séparation des actinides et des lanthanides semble réalisable à moyen terme. Les procédés de séparation poussée des

Isotope	Période (années)	Quantité (tonne/an)
^{90}Sr	29	0.6
^{137}Cs	30	1.3
^{99}Tc	$2,1.10^5$	1.0
^{93}Zr	$1,5.10^6$	0.9
^{135}Cs	$2,3.10^6$	0.4
^{107}Pd	$6,5.10^6$	0.25
^{129}I	$1,6.10^7$	0.2

TAB. 1.1 – *Principaux isotopes des produits de fission à vie longue ou à haute activité présents dans les déchets issus du combustible irradié, déchargé puis retraité chaque année pour l'ensemble du parc électro-nucléaire français d'après [5].*

Isotope	Période (années)	Quantité (tonne/an)
^{237}Np	$2,1.10^6$	0.51
^{241}Am	433	0.25
^{243}Am	7400	0.14
^{244}Cm	18	0.025
^{245}Cm	8500	0.001

TAB. 1.2 – *Principaux isotopes des actinides mineurs (Np, Am, Cm) à vie longue ou à haute activité présents dans les déchets issus du combustible irradié, déchargé puis retraité chaque année pour l'ensemble du parc électro-nucléaire français d'après [6].*

actinides mineurs (neptunium, américium et curium) ont été définis et testés sur l'installation Atalante du Centre d'Etudes Nucléaires de Marcoule et la faisabilité technique devrait être validée en 2005. Le schéma de séparation en cours de développement repose sur le procédé PUREX existant auquel des procédés de séparation chimique sont associés en aval pour la séparation des actinides mineurs et des produits de fission. Le schéma de référence de séparation poussée du combustible irradié est donné sur la figure 1.6. Le neptunium, le technétium et l'iode peuvent être traités avec plus ou moins d'efficacité dans les usines de retraitement actuelles par des adaptations du procédé PUREX.

La séparation de l'américium, du curium et du césium a nécessité le développement d'une nouvelle chimie de la séparation, ayant pour objectif la conception de molécules synthétiques très sélectives. Les différents procédés en cours de développement sont [18] :

- le procédé DIAMEX qui sépare les actinides mineurs et les lanthanides du reste des produits de fission,
- le procédé SANEX qui sépare les lanthanides d'un mélange d'américium et de curium,

- le procédé SESAME qui sépare l'américium du curium,
- le programme CALIXARENES qui sépare le césium par des molécules calixarènes à partir des solutions de produits de fission des procédés PUREX et DIAMEX.

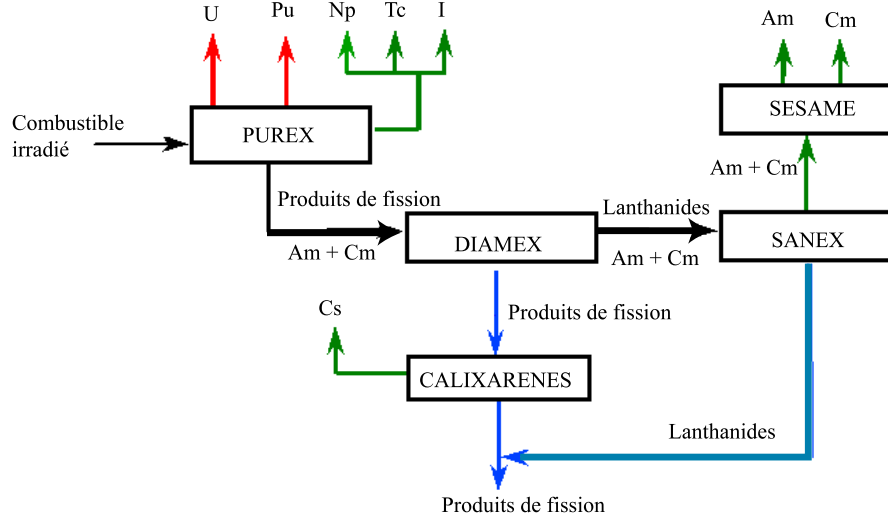


FIG. 1.6 – Schéma de référence pour les séparations du combustible irradié d'après la référence [18].

1.1.2 Introduction aux réacteurs hybrides

Introduction historique

Les développements récents des accélérateurs de particules ont permis d'envisager la production de faisceaux intenses de protons notamment grâce aux succès technologiques apportés par les cavités accélératrices radiofréquences (Radio Frequency Quadrupole) et supraconductrices ainsi que les progrès des technologies cryogéniques [10]. Un regain d'intérêt s'est donc manifesté pour les sources de spallation et leur couplage à un cœur sous-critique en vue de la réalisation d'une installation de production d'énergie. Le premier concept réaliste et détaillé de réacteur sous-critique piloté par accélérateur dans un but de transmutation des déchets nucléaires avec un spectre de neutrons thermiques et un combustible à sels fondus a été publié par C.D. Bowman et son groupe du Los Alamos National Laboratory (LANL/USA) en 1992 [7] introduisant le projet américain nommé Accelerator Transmutation of Waste (ATW) [8] du département à l'énergie (DOE). En Europe, le premier concept a été celui d'amplificateur d'énergie proposé par C. Rubbia au CERN [9] dont une représentation est donnée sur la figure 1.7.

Depuis, un certain nombre d'autres projets ont vu le jour dans le sillage de ces deux concepts précurseurs et la réalisation dans un premier temps d'un démonstrateur est apparue nécessaire.

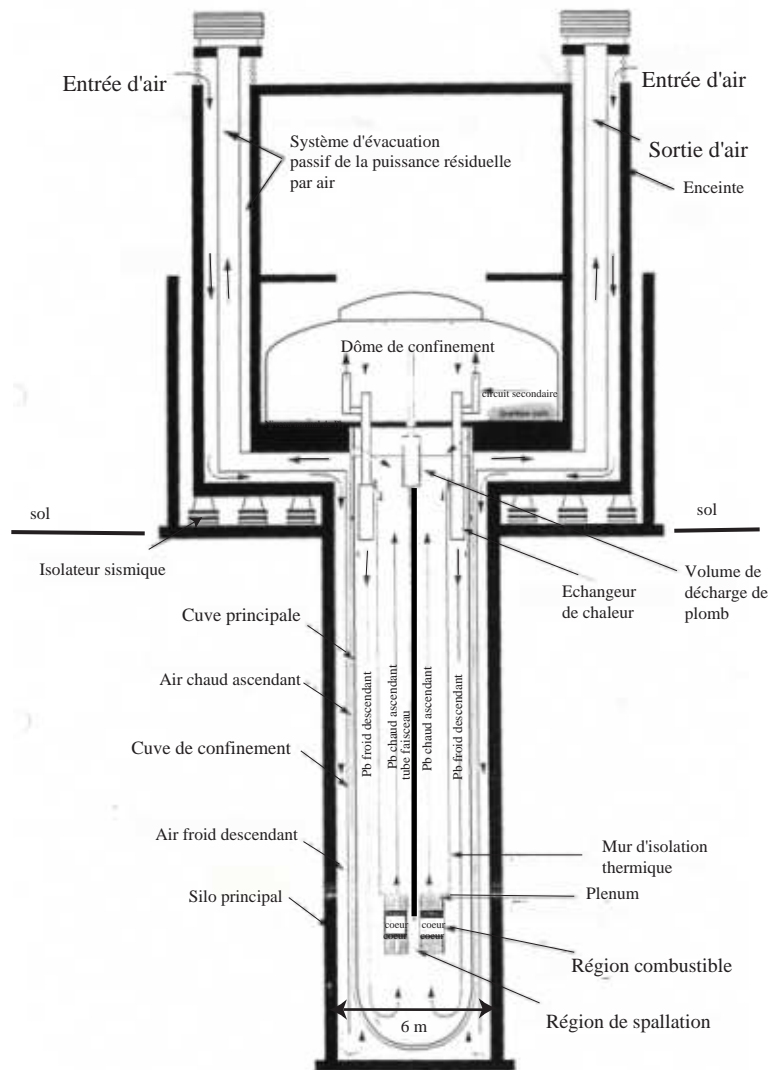


FIG. 1.7 – Coupe verticale de l'amplificateur d'énergie issue de la référence [9].

Par ailleurs, la place des réacteurs hybrides au sein d'un parc électro-nucléaire existant s'est précisée. D'un réacteur de production d'énergie, la communauté s'est dirigée vers un réacteur dédié à la réduction du volume et de la radiotoxicité à l'ingestion des déchets nucléaires. A ce jour, des étapes expérimentales explorent des points essentiels de la faisabilité d'un réacteur hybride et un projet de démonstrateur à l'échelle européenne permettrait de fédérer l'ensemble du travail accompli. Dans ce cadre, le groupe de l'Institut des Sciences Nucléaires [11], engagé dans le programme expérimental MUSE (MULTiplication d'une Source Externe) [12], ainsi que dans les études de scénarios, souhaitait prendre part au développement d'un projet de démonstrateur [13]. C'est dans le domaine de la simulation neutronique que le groupe pouvait envisager d'apporter sa contribution. Le concept proposé par la société Framatome ANP s'appuie sur son expérience de concepteur et de maître d'oeuvre de chaudières nucléaires. De ce fait, nous avons choisi de simuler et d'analyser ce concept particulièrement réaliste à l'aide des codes de calcul MCNP [14] et MCNPX [15] développés au Los Alamos National Laboratory (LANL/USA) et des outils logiciels développés au sein du groupe dont une présentation est donnée dans l'annexe A.

Avantages neutroniques et gains sur la radiotoxicité

Les spécificités neutroniques des réacteurs hybrides ouvrent des possibilités via la fission des actinides mineurs, désignée sous le vocable d'incinération et via la transmutation des produits de fission par réactions (n,γ) successives vers des éléments stables, notamment grâce à un spectre de neutrons rapides et un surplus de neutrons apporté par la source de neutrons de spallation. La sous-criticité permet d'envisager le chargement du cœur avec des combustibles présentant des proportions importantes d'actinides mineurs. Avec ces combustibles, les propriétés neutroniques sur lesquelles s'appuient la sûreté des installations se trouvent en effet dégradées par la faible proportion de neutrons retardés et par un effet Doppler réduit ou inexistant. Ces combustibles ne pourraient être utilisés avec des réacteurs critiques car ils mettraient en péril leur sûreté [16]. Seul un réacteur sous-critique permet de conserver un niveau de sûreté suffisant avec un combustible présentant une proportion de neutrons retardés (β_{eff}) faible ainsi qu'un coefficient de contre-réactivité Doppler réduit permettant l'utilisation de combustibles innovants à base d'actinides mineurs sans matrice fertile dans le but de leur incinération et donc de la réduction de la radiotoxicité à l'ingestion. La radiotoxicité à l'ingestion d'un combustible d'oxyde d'uranium irradié est dominée par le plutonium. Si l'on procède à une séparation et à un recyclage du plutonium, la radiotoxicité des déchets est alors dominée par les produits de fission lors des premières centaines d'années puis par les actinides mineurs. Parmi les actinides mineurs, l'américium contribue pour la part la plus importante de la radiotoxicité à l'ingestion entre 100 et 100000 ans, au delà c'est essentiellement le neptunium (^{237}Np) provenant de la décroissance α de ^{241}Am de période 433 ans qui domine [17]. On conçoit donc l'intérêt d'incinérer en priorité l'américium dans le cas où le plutonium est recyclé.

Les performances potentielles de la séparation - transmutation / incinération sont évaluées globalement à travers des études de scénarios [20]. Les études menées notamment depuis 1998 considèrent cinq grands groupes de scénarios que l'on peut classer en trois familles, selon le nombre de types de réacteurs du parc, désigné sous le vocable de composante [19]. Les taux de récupération des noyaux lourds recyclés lors de la séparation isotopique au retraitement sont fixés à 99.9 % pour tous les éléments recyclés (U, Pu, Np, Am et Cm) :

- Parc à une composante (deux scénarios) :

Le premier scénario est constitué d'un parc de REP qui assure le multirecyclage du plutonium dans des combustibles appelés MIX contenant de l'oxyde de plutonium (2 %) sur un support à uranium enrichi (3.8 %).

Le deuxième scénario est constitué d'un parc de RNR iso-générateurs avec recyclage des actinides mineurs.

- Parc à deux composantes (deux scénarios) :

Le premier scénario est constitué d'un parc de REP chargés en combustibles UOX et MOX actuels et de RNR. On envisage le recyclage du plutonium seul dans les REP chargés en combustible MOX (un ou deux recyclage) poursuivi dans les RNR associé au recyclage des actinides mineurs (en mode homogène pour le neptunium qui est mélangé au plutonium, et hétérogène pour les autres en cibles "à passage direct") et enfin transmutation supplémentaire de certains produits de fission à vie longue.

Le deuxième scénario est constitué d'un parc de REP chargés en combustible UOX et de réacteurs hybrides, ceux-ci incinérant l'ensemble plutonium, actinides mineurs et certains produits de fission.

- Parc à trois composantes (un scénario dit à double strate) :

Dans ce scénario, le parc est constitué d'une première strate, composé de réacteurs REP chargés en combustibles UOX et MOX et de RNR ; cette strate est dévolue à la production d'énergie avec multirecyclage du plutonium seul. La deuxième strate est formée de réacteurs hybrides incinérant les actinides mineurs et certains produits de fission à vie longue.

Deux scénarios utilisent les réacteurs hybrides, à savoir un scénario à double composante et le scénario désigné sous le terme de double strate.

Globalement, on observe une diminution d'un facteur de l'ordre de 100 sur la radiotoxicité à l'ingestion pour les scénarios de multi-recyclage du plutonium, associés à la stratégie séparation - transmutation/incinération des actinides mineurs en réacteurs hybrides [21] [22] [23] [24] [25].

1.2 Description d'un réacteur hybride

1.2.1 Rappels de neutronique

La principale spécificité neutronique d'un réacteur hybride provient du couplage entre la source de neutrons créés par réactions de spallation entre un faisceau de protons et une cible à base de noyaux lourds (tels que le plomb, l'eutectique plomb-bismuth ou le tungstène) et le cœur sous-critique. Nous allons donc commencer par rappeler les grandeurs physiques pertinentes puis analyser le couplage entre la source et le cœur.

Définition générale des facteurs de multiplication effectif k_{eff} et infini k_{∞}

Supposons un cœur de réacteur composé d'un total de m noyaux différents constituant le caloporteur, les éléments de structure et le combustible et dont n noyaux différents forment le combustible. Le facteur de multiplication effectif (k_{eff}) peut être défini comme le rapport entre le nombre de neutrons créés par fission ($N_{crées}$) et le nombre total de neutrons perdus par absorption ($N_{absorbés}$) ou par fuite (N_{fuites}) en supposant une distribution établie de neutrons, soit :

$$k_{eff} = \frac{N_{crées}}{N_{absorbés} + N_{fuites}} \quad (1.4)$$

Le nombre de neutrons créés dans le volume (V) du cœur sur l'ensemble des n différents noyaux de combustible présents dans le cœur s'écrit, en négligeant les réactions (n,xn) :

$$N_{crées} = \sum_{i=1}^n \left(\int_{E=0}^{E=+\infty} \left(\int_V \nu_i(E) n_i(\vec{r}) \sigma_i^{fis}(E) \phi(\vec{r}, E) dV \right) dE \right) \quad (1.5)$$

où :

- $n_i(\vec{r})$ est le nombre de noyaux i par unité de volume à la position \vec{r} du combustible,
- $\nu_i(E)$ est le nombre moyen de neutrons émis par la fission du noyau i induite par un neutron d'énergie E ,
- $\sigma_i^{fis}(E)$ est la section efficace différentielle de fission du noyau i à l'énergie E ,
- et $\phi(E, \vec{r})$ est le flux neutronique à l'énergie E et à la position \vec{r} .

Le nombre de neutrons absorbés dans le volume (V) du cœur sur l'ensemble des m noyaux différents présents s'écrit :

$$N_{absorbés} = \sum_{i=1}^m \left(\int_{E=0}^{E=+\infty} \left(\int_V n_i(\vec{r}) \sigma_i^{abs}(\vec{r}, E) \phi(\vec{r}, E) dV \right) dE \right) \quad (1.6)$$

où :

- $\sigma_i^{abs}(E)$ est la section efficace microscopique d'absorption du noyau i présent dans le cœur (combustible, structure, caloporteur). Le nombre de neutrons absorbés $N_{absorbés}$

est la somme des nombres de neutrons absorbés sur l'ensemble des réactions possibles ((n,fission), (n,xn), (n,γ)). En remarque, les sections efficaces macroscopiques d'absorption ($\Sigma_i^{abs}(\vec{r}, E) = n_i(\vec{r})\sigma_i^{abs}(E, \vec{r})$) du caloporteur et des éléments de structure peuvent être considérées constantes lors d'un mode de fonctionnement normal mais ce n'est plus le cas lors de transitoires d'incidents ou d'accidents induisant des variations de température importantes qui modifient les sections efficaces microscopiques ($\sigma_i^{abs}(E, \vec{r})$) ou la densité atomique ($n_i(\vec{r})$) de ces matériaux suite à leurs dilatations ou changements de phase.

En règle générale, ce sont les absorptions dans le combustible qui auront tendance à évoluer durant le fonctionnement normal du réacteur. Il faut ajouter au terme d'absorption dans le cœur un terme représentant les neutrons qui s'échappent du réacteur. Ce terme de fuite est délicat à définir du fait de la présence d'un réflecteur qui permet à des neutrons qui s'échappent du cœur d'y revenir après quelques diffusions. Cependant, on écrit ce terme dans le formalisme des équations de la théorie de la diffusion :

$$N_{fuites} = \int_S \vec{J} d\vec{S} \quad (1.7)$$

où \vec{J} représente un courant net de neutrons à travers l'ensemble des surfaces extérieures, noté S , du réacteur. Les absorptions dans le réflecteur sont comptées dans ce terme de fuite.

Le facteur k_∞ correspond par définition à un réacteur infini donc sans fuite d'où :

$$k_\infty = \frac{N_{crées}}{N_{absorbés}} \quad (1.8)$$

avec les définitions des nombres de neutrons créés ($N_{crées}$) et absorbés ($N_{absorbés}$) identiques à celles données précédemment pour définir k_{eff} . On en déduit une définition à partir des sections efficaces macroscopiques :

$$k_\infty = \nu \frac{\Sigma^{fis}}{\Sigma^{abs}} \quad (1.9)$$

- ν étant le nombre moyen de neutrons émis par fission sur l'ensemble des noyaux fissiles,
- $\Sigma^{abs} = \sum_{i=1}^m n_i \sigma_i^{abs}$: la section efficace macroscopique d'absorption totale dans le cœur pour l'ensemble des m noyaux présents (cm^{-1}) de densités atomiques moyennées sur l'espace n_i (atomes/ cm^3) et de sections efficaces microscopiques d'absorption σ_i^{abs} moyennées sur l'espace et l'énergie,
- $\Sigma^{fis} = \sum_{i=1}^n n_i \sigma_i^{fis}$ la section efficace macroscopique de fission pour l'ensemble des n noyaux différents de combustible (cm^{-1}) de densités atomiques moyennées sur l'espace n_i (atomes/ cm^3) et de sections efficaces microscopiques de fission σ_i^{fis} moyennées sur l'espace et l'énergie.

A partir des définitions de k_∞ et k_{eff} en fonction des nombres de neutrons créés ($N_{crés}$) et de neutrons absorbés ($N_{absorbés}$), on peut en déduire une relation simple entre k_∞ et k_{eff} :

$$k_\infty = k_{eff} \left(1 + \frac{N_{fuites}}{N_{absorbés}} \right) \quad (1.10)$$

Cette dernière relation est valable dans l'approximation du réacteur point [26] car elle ne tient pas compte des effets de spectre énergétique liés aux neutrons modérés par le réflecteur revenant dans le cœur.

1.2.2 Analyse du couplage source-cœur

Définition du facteur de multiplication source k_s

Dans le cas d'un système hybride, la source de neutrons créés par spallation possède un spectre en énergie différent d'une source de fission stabilisée. Pour tenir compte de cette différence, il a été nécessaire d'introduire un facteur de multiplication source.

Le cœur étant sous-critique, la chaîne de multiplication associée à une impulsion de neutrons source sera finie et dépendante de la multiplication de chaque génération. On définit alors un coefficient de multiplication pour chaque génération i en tenant compte de l'ensemble des réactions possibles, noté k_i [23], comme le rapport entre le nombre de neutrons à la génération i , et le nombre de neutrons à la génération précédente, notés respectivement $n_{(i)}$ et $n_{(i-1)}$ soit :

$$k_i = \frac{n_{(i)}}{n_{(i-1)}} \quad (1.11)$$

k_i représente également le rapport entre le nombre de fissions à la génération i , et le nombre de fissions à la génération précédente. Soit N_s , le nombre de neutrons source produits par proton source, défini comme la multiplicité (le nombre de neutrons par proton source), alors le nombre total de neutrons engendrés par la multiplication neutronique est donné par la chaîne de fission suivante :

$$N_{tot} = (1 + k_1 + k_1 k_2 + k_1 k_2 k_3 + .. + k_1 k_2 k_3 .. k_i + ...). N_s = \sum_{i=0}^{+\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right). N_s \quad (1.12)$$

où k_i représente le facteur de multiplication de la génération i et en posant $k_0 = 1$.

Par hypothèse, le système est sous-critique, donc il existe un rang n_0 à partir duquel les k_i deviennent inférieurs à 1. La série est donc convergente et on peut définir k_s comme la raison de la série géométrique qui converge vers la même limite d'où :

$$\frac{N_{tot}}{N_s} = \sum_{i=0}^{+\infty} \left(\prod_{j=0}^i k_j \right) = \frac{1}{1 - k_s} \quad (1.13)$$

La quantité $\frac{1}{1-k_s}$ est proportionnelle au gain du système hybride et le facteur k_s représente le facteur de multiplication d'un neutron provenant de la source de spallation.

On obtient donc :

$$k_s = \frac{N_{tot} - N_s}{N_{tot}} \quad (1.14)$$

On en déduit alors le nombre total de fissions par neutron source en introduisant le nombre moyen de neutrons émis par fission (ν) :

$$N_{fiss} = \frac{1}{\nu} \frac{k_s}{1 - k_s} \quad (1.15)$$

Maintenant, on va définir un lien entre les différents facteurs de multiplication, à savoir le facteur de multiplication effectif (k_{eff}), le facteur de multiplication source (k_s) et les facteurs de multiplication de chaque génération (k_i).

Relation entre k_{eff} , k_s et k_i

Le facteur de multiplication k_{eff} peut s'interpréter comme le facteur de multiplication neutronique lorsque l'influence de la source est "oubliée", soit au bout d'un certain nombre de multiplications.

$$k_{eff} = \lim_{i \rightarrow +\infty} k_i \quad (1.16)$$

Dans la pratique, quelques générations suffisent. Par exemple, la figure 1.8 présente la convergence des k_i vers k_{eff} pour le démonstrateur de réacteur hybride considéré et présenté au paragraphe suivant avec un k_{eff} de 0.95. La convergence s'établit à la troisième génération. Il est à noter également la valeur importante du facteur k_1 qui est de l'ordre de 1.6. Cet effet s'explique essentiellement par la production de neutrons suite à des réactions (n,2n) se produisant sur les noyaux de plomb et de bismuth par des neutrons source d'énergie élevée (le seuil (n,2n) du plomb est de l'ordre de 7 MeV) permettant de "multiplier" les neutrons source avant qu'ils ne provoquent les premières fissions. Cette valeur élevée de k_1 a un effet non négligeable sur le facteur k_s de multiplication des neutrons source [23].

Le facteur k_{eff} va gouverner la sûreté du réacteur hybride après arrêt du faisceau.

On peut réécrire la limite donnée par la relation 1.16 dans un formalisme mathématique différent :

Quel que soit $\delta k > 0$, il existe n_0 tel que pour $i > n_0 - 1$, $|k_i - k_{eff}| < \delta k$

$$N_{tot} = N_s(1 + k_1 + k_1 k_2 + k_1 k_2 k_3 + \dots + k_1 k_2 k_3 \dots k_{n_0-1} + \frac{k_1 k_2 k_3 \dots k_{n_0-1} k_{n_0}}{1 - k_{eff} \pm \delta k}) \quad (1.17)$$

soit d'après 1.14 :

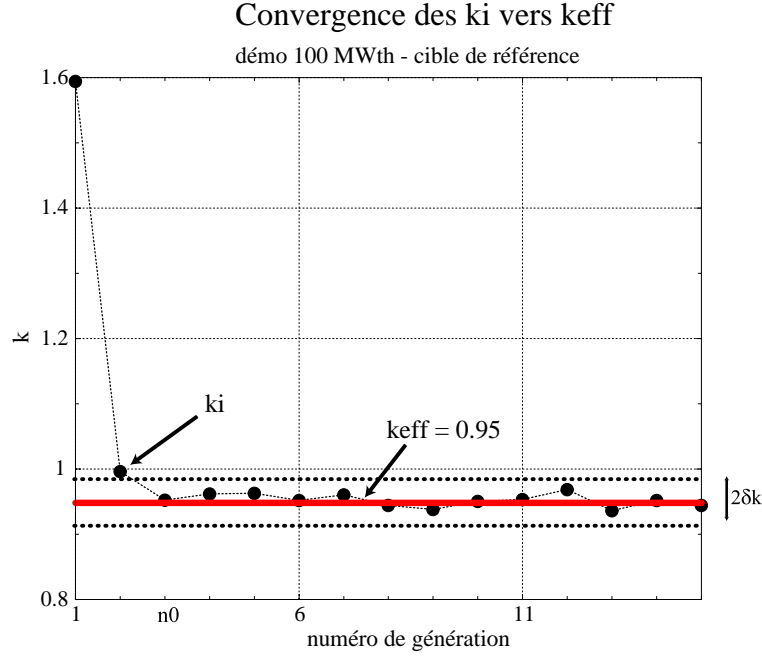


FIG. 1.8 – Convergence des facteurs k_i vers k_{eff} dans le cas du démonstrateur de 100 MWth avec du combustible MOX (UO_2 - PuO_2) enrichi à 24.1 % de plutonium. La convergence des k_i vers k_{eff} est atteinte à partir de la génération $n_0=3$ d'après nos simulations.

$$k_s = 1 - \frac{1}{1 + k_1 + k_1 k_2 + k_1 k_2 k_3 + \dots + k_1 k_2 k_3 \dots k_{n_0-1} k_{n_0} + \frac{k_1 k_2 k_3 \dots k_{n_0-1} k_{n_0}}{1 - k_{eff} \pm \delta k}} \quad (1.18)$$

Supposons, pour illustrer notre propos que $k_i = k_{eff}$ à partir de la deuxième génération, on aurait alors :

$$k_s \approx 1 - \frac{1}{1 + k_1 + k_1 k_{eff} + k_1 k_{eff}^2 + \dots + k_1 k_{eff}^i + \dots} \quad (1.19)$$

$$k_s \approx 1 - \frac{1}{1 + \frac{k_1}{1 - k_{eff}}} = \frac{k_1}{1 + k_1 - k_{eff}} \quad (1.20)$$

soit :

$$\frac{k_s}{1 - k_s} \approx \frac{k_1}{1 - k_{eff}} \quad (1.21)$$

Le gain est proportionnel à $\frac{k_s}{1 - k_s}$. Qualitativement, on voit que l'on peut se trouver dans le cas où le gain reste constant alors que k_1 diminue et k_{eff} augmente. **La simple mesure de k_s (du gain) ne semble pas suffisante du point de vue de la sûreté.** La diminution de k_1 pouvant être provoquée par une dégradation du couplage source-cœur (empoisonnement de la cible par exemple) et l'augmentation de k_{eff} par une remontée de barres de commande ou l'évolution du combustible par exemple. La mesure de k_{eff} en temps réel semble donc indispensable [27]. Pour ce faire, une méthode expérimentale va être testée dans le cadre de l'expérience MUSE [12] sur le réacteur maquette MASURCA [28] au Centre d'Etudes Nucléaires de Cadarache.

Définitions à partir des protons source

La relation 1.14 est bien adaptée à l'utilisation du code de calcul MCNP où la variable d'entrée est le nombre de neutrons source. Par contre, dans le cas du code de calcul MCNPX, où la physique de la spallation est intégrée et où la variable d'entrée est désormais le nombre de protons source, cette relation devient inadéquate. Pour un proton incident, le nombre de neutrons engendrés correspond à la multiplicité. Cette source de neutrons n'est pas localisée et possède une extension spatiale ce qui rend difficile l'évaluation de la multiplicité. Par exemple, des neutrons issus de la spallation vont engendrer des réactions (n,xn) dans le cœur, ces neutrons peuvent à leur tour être considérés comme des neutrons source qui sont définis par rapport à un seuil arbitraire en énergie (coupure à 20 MeV en général). Or, la prise en compte de la spallation et l'extension des sections efficaces à 150 MeV pour MCNPX, rend nécessaire une redéfinition de la notion de neutrons source. Une définition, basée sur des critères physiques tels que les seuils de réactions (n,2n), semble plus justifiée par des arguments physiques. Un calcul MCNPX, des neutrons obtenus à la sortie du module de spallation montre leur étalement spatial et énergétique (figures 1.9). Pour nous affranchir des neutrons source, nous avons choisi de raisonner sur le nombre de fissions pour définir le couplage à partir des protons source. La chaîne de fission est donc la suivante pour un proton source :

$$1 \text{ proton} \rightarrow N_1^{fiss} \rightarrow N_2^{fiss} \dots \rightarrow N_i^{fiss} \rightarrow \dots \quad (1.22)$$

On en déduit une définition intuitive du couplage, noté C, qui correspond au nombre de premières fissions induites par proton source.

Relations entre k_s , k_i et définition du couplage source-cœur

Le nombre total de fissions par proton source est la somme des nombres de fission à chaque génération, soit :

$$N^{fiss} = N_1^{fiss} + N_2^{fiss} + \dots + N_i^{fiss} + \dots \quad (1.23)$$

En introduisant le couplage $C = N_1^{fiss} = \frac{k_1 N_s}{\nu}$ qui correspond au nombre de fissions de la première génération, on obtient par proton source :

$$N^{fiss} = C + N_2^{fiss} + \dots + N_i^{fiss} + \dots \quad (1.24)$$

Ce couplage tient compte du spectre et de la répartition spatiale des neutrons issus de la spallation. En introduisant les facteurs de multiplication k_i , on obtient :

$$N^{fiss} = C(1 + k_2 + k_2 k_3 + \dots + k_2 \dots k_i + \dots) \quad (1.25)$$

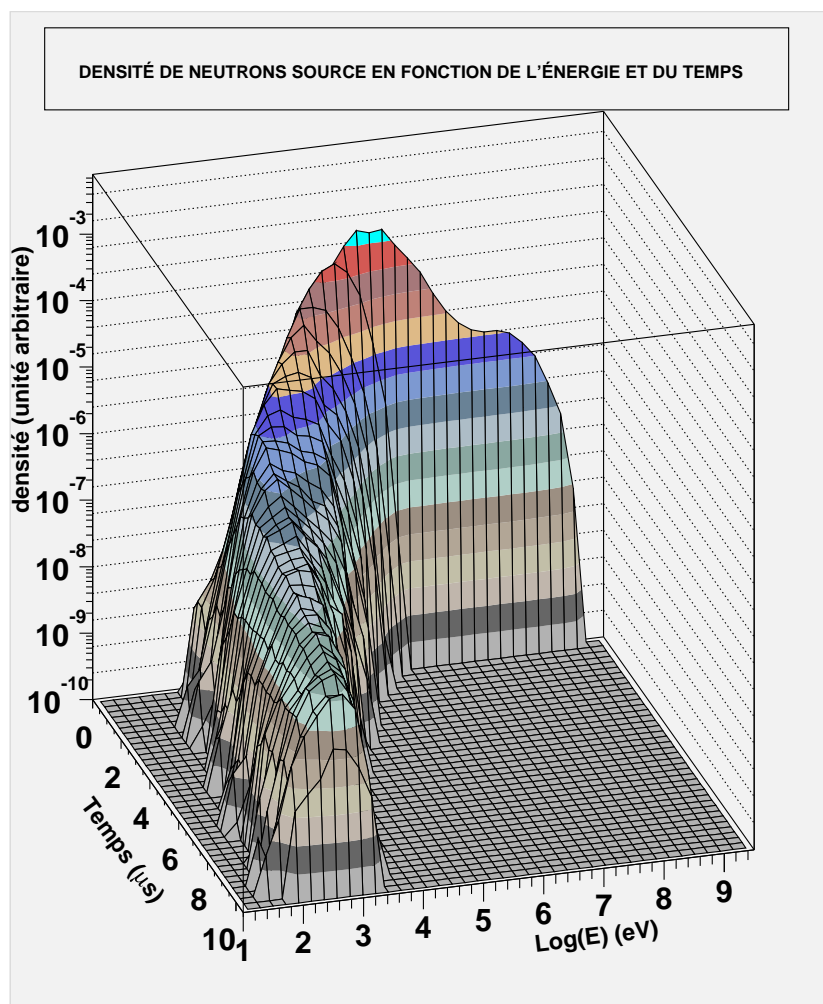


FIG. 1.9 – *Spectre en énergie et en temps des neutrons source. Le spectre énergétique des neutrons évolue en quelques microsecondes lors de la traversée du milieu formé par la cible et le cœur. Le maximum du spectre passe de quelques MeV (maximum d'un spectre de spallation) à quelques keV par ralentissement.*

Supposons, que la convergence vers k_{eff} soit rapide et qu'à partir de la deuxième génération (i=2), $k_i \approx k_{eff}$. Cette hypothèse n'est pas forcément réaliste pour des systèmes où la source se stabilise lentement.

$$N^{fiss} \approx C(1 + k_{eff} + k_{eff}^2 + .. + k_{eff}^i + ...) \quad (1.26)$$

Le système est sous-critique ($k_{eff} < 1$) donc la série converge et on obtient :

$$N^{fiss} \approx \frac{C}{1 - k_{eff}} \quad (1.27)$$

La puissance thermique par proton source est donc en supposant l'hypothèse de convergence rapide (convergence des k_i vers k_{eff} dès la deuxième génération) :

$$P_{th} \approx \frac{IC}{q} \frac{1}{1 - k_{eff}} E_{fiss} \quad (1.28)$$

avec P_{th} la puissance (W), E_{fiss} l'énergie dégagée par fission (J), q la charge électrique du proton (C) et I l'intensité du faisceau de protons (A).

On en déduit l'intensité du faisceau :

$$I \approx \frac{P_{th}q}{E_{fiss}} \frac{1 - k_{eff}}{C} \quad (1.29)$$

Coefficient φ^*

Ce coefficient donne une mesure de la "qualité" du couplage [29], il s'exprime alors en fonction des facteurs de multiplication k_s et k_{eff} :

$$\varphi^* = \frac{k_s}{1 - k_s} / \frac{k_{eff}}{1 - k_{eff}} \quad (1.30)$$

Le coefficient φ^* dépend de la géométrie de la source et du spectre énergétique des neutrons source. Sa valeur est généralement proche de un mais nous verrons par la suite des solutions envisageables pour améliorer ce rapport. Les facteurs de multiplication k_s et k_{eff} étant corrélés, l'incertitude sur φ^* est majorée par :

$$\Delta\varphi^* \leq \varphi^* \left(\frac{\Delta k_s}{k_s} + \frac{\Delta k_s}{1 - k_s} + \frac{\Delta k_{eff}}{k_{eff}} + \frac{\Delta k_{eff}}{1 - k_{eff}} \right) \quad (1.31)$$

La réduction de cette incertitude nécessite une précision importante sur k_s et k_{eff} issus de calculs indépendants. L'incertitude sur k_{eff} , calculée par MCNP à partir de différents estimateurs statistiques est minimisée. Par contre l'incertitude sur k_s , issue de la relation 1.14, est prise égale à :

$$\frac{\Delta k_s}{k_s} \approx \frac{2}{\sqrt{N_{tot}}} \quad (1.32)$$

où N_{tot} est le nombre total de neutrons engendrés par un nombre de neutrons source fixé. Cette dernière relation s'obtient en différenciant la relation 1.14 : $\frac{dk_s}{k_s} = \frac{d(N_{tot}-N_s)}{N_{tot}-N_s} - \frac{dN_{tot}}{N_{tot}}$

En passant aux incertitudes, on obtient alors :

$$\frac{\Delta k_s}{k_s} = \frac{\Delta N_{tot}}{N_{tot}-N_s} + \frac{\Delta N_s}{N_{tot}-N_s} + \frac{\Delta N_{tot}}{N_{tot}}$$

On suppose que $N_{tot} \gg N_s$ soit $N_{tot} - N_s \approx N_{tot}$

$$\Rightarrow \frac{\Delta k_s}{k_s} \approx \frac{2\Delta N_{tot}}{N_{tot}} + \frac{\Delta N_s}{N_{tot}}$$

N_s est fixé donc $\Delta N_s = 0$.

Par ailleurs, l'erreur statistique sur le nombre total de neutrons calculé par MCNP est donnée par : $\frac{\Delta N_{tot}}{N_{tot}} = \frac{1}{\sqrt{N_{tot}}}$.

On obtient donc : $\frac{\Delta k_s}{k_s} \approx \frac{2}{\sqrt{N_{tot}}}$

En réécrivant, l'expression 1.15, par proton source avec N_s le nombre de neutrons par proton source défini précédemment, on obtient :

$$N_{fiss} = \frac{N_s}{\nu} \frac{k_s}{1 - k_s} \quad (1.33)$$

En comparant les expressions du nombre total de fissions, données par les relations 1.33 et 1.27, on déduit une interprétation du coefficient φ^* à partir du couplage C. On a par identification :

$$\varphi^* \approx \frac{\nu C}{N_s k_{eff}} = \frac{k_1}{k_{eff}} \quad (1.34)$$

En supposant que ν est de l'ordre de 3 neutrons par fission, N_s de l'ordre de 30 neutrons par proton source, k_{eff} de l'ordre de 1 et C de l'ordre de 10 fissions par proton, on vérifie bien que φ^* est sans dimension et de l'ordre de 1. On comprend, par cette dernière relation, que le coefficient φ^* caractérise le couplage entre la source et le cœur. Le coefficient C est une bonne approximation du couplage si la convergence des k_i est rapide vers k_{eff} . Le coefficient φ^* tient compte de l'ensemble des k_i . L'incertitude d'origine statistique sur C, calculé par MCNPX, est donnée par :

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{1}{\sqrt{N_1^{fiss}}} \quad (1.35)$$

Pour 500 protons source, cette incertitude est de l'ordre de 1% alors que l'incertitude sur le coefficient φ^* est de l'ordre de 10 % à cause de la corrélation entre k_s et k_{eff} .

Relation entre l'intensité du faisceau, le couplage et la puissance totale

Paramètre économique déterminant, l'intensité du faisceau doit être minimisée. Tout gain sur l'intensité du faisceau à puissance fournie constante est une amélioration du rendement de l'installation.

$$I = \frac{P_{th} q \nu}{N_s E_{fis}} \frac{1 - k_{eff}}{k_{eff}} \frac{1}{\varphi^*} \quad (1.36)$$

A paramètres fixés, l'intensité est inversement proportionnelle à φ^* . L'amélioration du couplage, et par conséquent la maximisation du coefficient φ^* , permet de minimiser l'intensité du faisceau.

1.3 Présentation du démonstrateur étudié

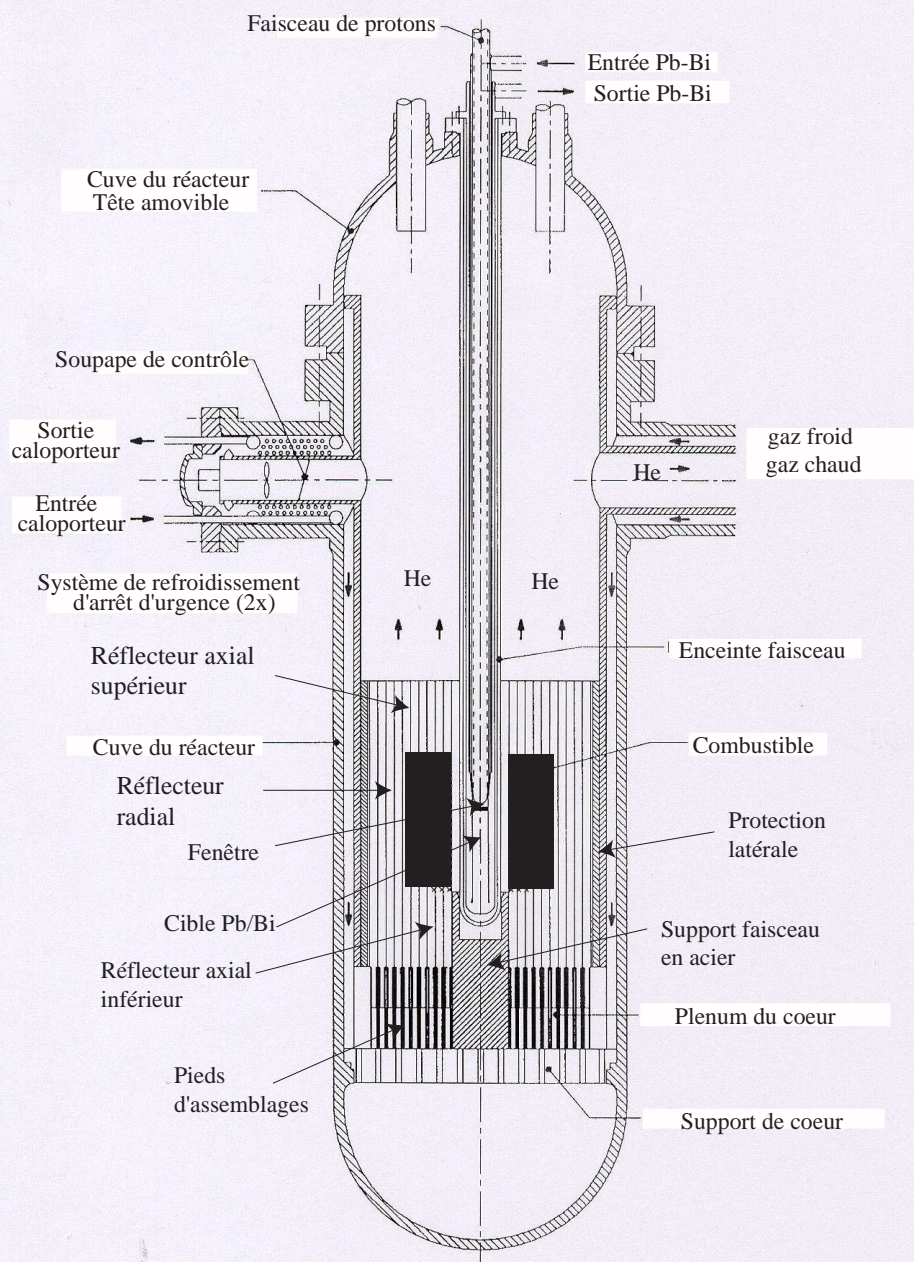
Le démonstrateur envisagé est le concept de réacteur hybride proposé par la société Framatome ANP [30]. Il est constitué d'un module de spallation, qui comprend l'ensemble formé par le faisceau et la cible de spallation, et d'un cœur sous-critique constitué d'assemblages hexagonaux. L'ensemble est contenu dans une cuve de grandes dimensions (16 m de hauteur et 4 m de diamètre) dont la hauteur est plus du double de la longueur d'un assemblage pour pouvoir réaliser le déplacement des assemblages sans procéder à l'ouverture de la cuve et par conséquent limiter les interventions en ambiance radioactive. Le démonstrateur doit être flexible dans son utilisation et la cuve doit permettre la constitution de cœurs de dimensions variables. Une coupe verticale du cœur est donnée figure 1.10. La puissance thermique de référence est de 100 MWth [31].

1.3.1 Le module de spallation

Le module de spallation (figure 1.11) comprend le tube faisceau, dont l'extrémité est fermée par une fenêtre et la cible de spallation. Il reprend les caractéristiques définies dans la référence [30]. La cible de spallation est formée de l'eutectique plomb-bismuth liquide (45 % de plomb naturel et 55 % de ^{209}Bi) amené le long du tube du faisceau. Le module de spallation est refroidi par une circulation de gaz, et le plomb-bismuth lui-même par des échangeurs externes. La société Framatome ANP explore également une cible solide en tungstène refroidi à l'hélium qui simplifierait l'architecture du module de spallation mais dont les performances neutroniques sont légèrement inférieures [32]. La cible est dimensionnée pour une intensité maximale du faisceau de 10 mA¹ avec une énergie des protons de 1 GeV. Cette énergie optimise le rendement de spallation (multiplicité) qui est de l'ordre de 30 neutrons par proton dans une cible de plomb

1. une intensité maximale de 10 mA est choisie pour le démonstrateur dans le but de tester un module de spallation susceptible d'être utilisé pour un réacteur de 600 à 1000 MWth suivant la valeur de k_{eff} .

**OPTIMISATION NEUTRONIQUE D'UN DEMO
CONCEPT REFROIDI A L'HELIUM
PROPOSE PAR LA SOCIETE FRAMATOME**



FRAMATOME ANP
NOVATOME

Ce document est la propriété de FRAMATOME ANP. Il ne peut être reproduit ou divulgué sans autorisation écrite préalable

FIG. 1.10 – Coupe du démonstrateur proposé par la société Framatome ANP.

pour des protons de 1 GeV [33]. Une densité de courant inférieure à $50 \mu\text{A.cm}^{-2}$ en moyenne sur la surface de la fenêtre est requise. Cette valeur limite de la densité de courant a été définie suite aux études thermohydrauliques et de résistance des matériaux réalisées sur le module de spallation [34]. Ces études ont permis de définir le domaine de température acceptable pour le plomb-bismuth en fonction du coefficient d'échange thermique et de la vitesse d'écoulement de l'eutectique. La température est comprise entre 275°C en entrée et 425°C en sortie en tenant compte des régimes transitoires incidentels et accidentels pour un coefficient de transfert de chaleur par convection de $4.10^4 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$. L'ensemble du plomb-bismuth est contenu dans une enceinte (tube de force) où la paroi de 2.5 cm d'épaisseur assure le confinement. Le module de spallation repose sur un cylindre d'acier qui réalise la protection neutronique dans l'axe du faisceau. Le rayon extérieur du module de spallation est de 29 cm dans cette configuration qui définit la cible de référence. Le plomb-bismuth arrive par le haut le long du tube faisceau, traverse un diffuseur placé quelques centimètres après la fenêtre, puis remonte le long du tube faisceau dans un canal séparé. Le cœur est centré sur le barycentre de la source de spallation situé 15 cm en dessous de la fenêtre.

1.3.2 Les assemblages du cœur

Le cœur est constitué de tubes hexagonaux en acier dont le pas est de 12 cm. La partie combustible est constituée initialement de 84 assemblages. L'épaisseur des parois des tubes hexagonaux est de 4,5 mm et leur espacement est de 2,5 mm. L'intérieur des tubes hexagonaux comprend l'ensemble des crayons (ou aiguilles) entre lesquels s'enroulent des fils d'acier pour assurer leur cohésion. Au sein des crayons se trouve le combustible gainé. La hauteur combustible de référence est de 1.50 m. Une protection neutronique est disposée sur les parties supérieure et inférieure des tubes hexagonaux, elle a également le rôle de réflecteur axial. La hauteur de la protection supérieure est de 70 cm et celle de la protection inférieure de 30 cm avec un canal central pour assurer le passage de l'hélium. L'hélium, utilisé comme caloporteur, circule à l'intérieur et entre les tubes hexagonaux à une pression comprise entre 60 et 70 bars. On obtient alors une température de l'hélium en entrée du cœur de 200°C pour une température en sortie inférieure à 450°C pour des raisons de résistance mécanique des matériaux de structure [35]. Le taux de remplissage des protections est de 80 % pour la protection supérieure et de 30 % pour la protection inférieure, l'espace libre permettant le passage de l'hélium. Des espaces d'expansion supérieur et inférieur sont prévus avec respectivement des hauteurs de 15 et 90 cm pour contenir les produits de fission gazeux.

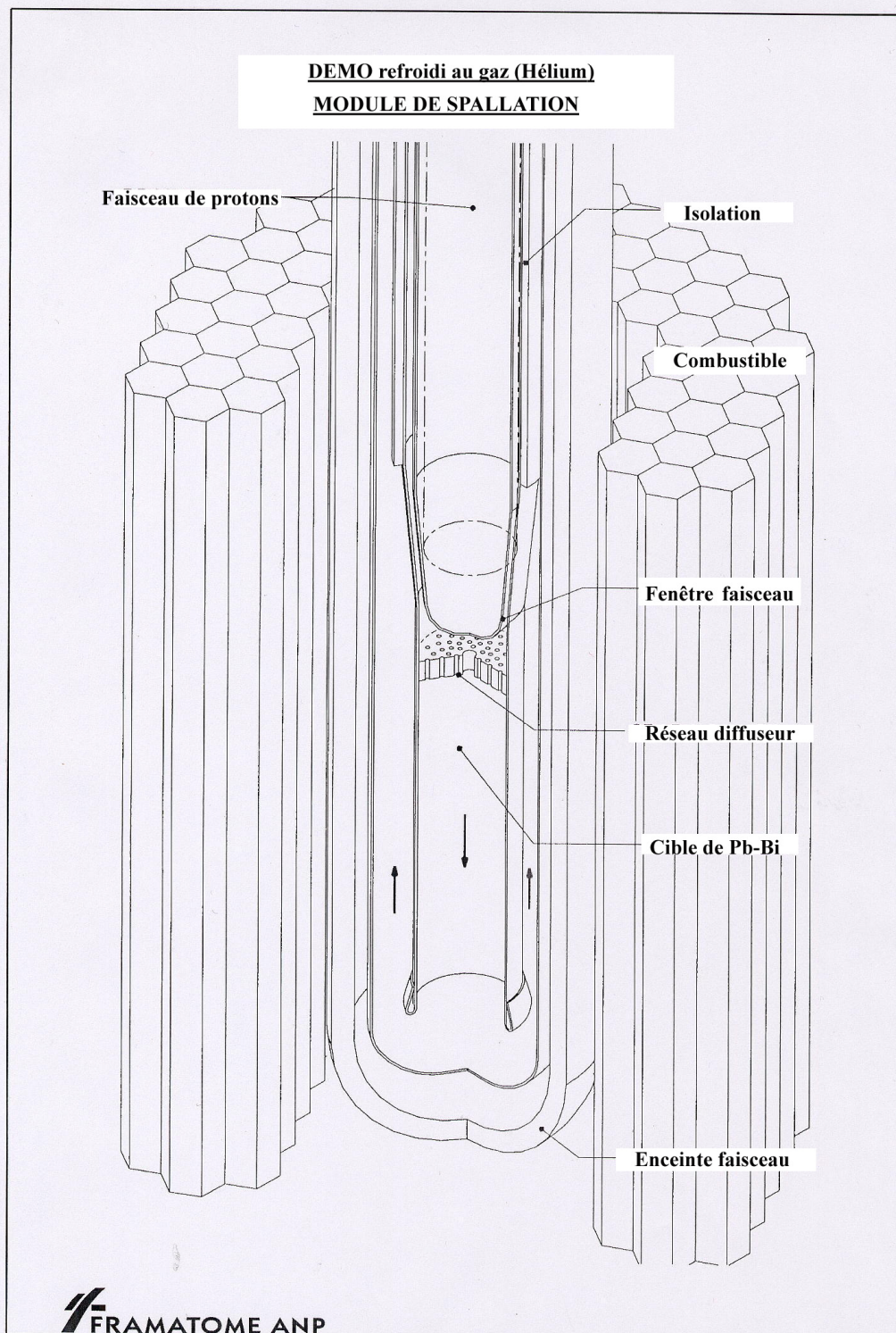


FIG. 1.11 – Eclaté du module de spallation proposé par la société Framatome ANP.

1.3.3 Le combustible de référence

Le combustible de référence est un combustible de type MOX ($\text{UO}_2\text{-PuO}_2$). La composition du combustible retenue correspond au MOX issu du parc électronucléaire actuel (REP, combustible UOX) refroidi cinq ans avant retraitement. Le temps de vieillissement, qui correspond au temps écoulé entre la fabrication et le chargement, est de trois ans (moyenne actuelle). Ce vieillissement entraîne la formation d' ^{241}Am au sein du combustible via la décroissance du plutonium ^{241}Pu de période 14.35 ans. L'uranium utilisé est de l'uranium naturel (0.72 % d' ^{235}U) qui peut être remplacé par de l'uranium appauvri (0.22 % d' ^{235}U). La composition est donnée dans le tableau (1.3) en fonction de l'enrichissement e défini comme :

$$e = \frac{n_{Pu}}{n_U + n_{Pu}} \quad (1.37)$$

avec n_{Pu} le nombre d'atomes de plutonium (avec l' ^{241}Am) et n_U le nombre d'atomes d'uranium. Nous avons considéré un enrichissement maximum de 30 % pour des raisons de sûreté de fabrication même si des enrichissements supérieurs sont envisageables pour des installations de recherche.

Isotope	%
^{235}U	$0.72 \times (1 - e)$
^{238}U	$99.28 \times (1 - e)$
^{238}Pu	$1.97 \times e$
^{239}Pu	$53.31 \times e$
^{240}Pu	$25.67 \times e$
^{241}Pu	$9.87 \times e$
^{242}Pu	$7.90 \times e$
^{241}Am	$1.28 \times e$

TAB. 1.3 – Vecteur isotopique du MOX en fonction de l'enrichissement e ($0 \leq e \leq 0.3$).

Ce démonstrateur reprend les technologies validées et éprouvées dans le cadre des réacteurs à neutrons rapides ainsi que les développements récents envisagés dans le cadre des réacteurs refroidis au gaz [36] [37] (Advanced Gas cooled Reactor, High Temperature Gas Reactor..). L'utilisation de l'hélium comme caloporteur permet la mise en place d'un circuit direct entre le circuit primaire de refroidissement et la turbine. Un cycle direct permet un gain notable sur le rendement thermodynamique de l'installation qui devient proche de 50 %. A terme, il est envisagé d'augmenter la température du caloporteur pour travailler à haute température. D'importants travaux de recherche et développement sur les combustibles s'avèrent nécessaires pour atteindre cet objectif (combustibles carbures, réfractaires..). Ces travaux sur les combustibles devront être guidés par le souci de performance lié à la transmutation et à l'incinération des déchets

nucléaires, objectifs premiers du démonstrateur.

1.3.4 Phases de démonstration

Une première phase sera consacrée à la démonstration du concept de réacteur hybride expérimental désigné sous le sigle de XADS (eXperimental Accelerator Driven System) avec une technologie de combustible déjà disponible et validée (combustible MOX (U/Pu)) de type Superphenix. Cette phase comprend la démonstration du couplage entre la source et le cœur sous-critique avec la possibilité de tester le module de spallation seul, de l'exploitation avec le mode de pilotage choisi, de la sûreté et de la fiabilité de l'installation. Cette phase de fiabilisation et de montée en puissance devra s'accompagner de mesures d'irradiation de combustibles nouveaux à base d'actinides mineurs ou de produits de fission en vue de leur caractérisation et de leur validation. La mise en place d'une boucle d'irradiation pour un combustible à sels fondus est à envisager. Une deuxième phase sera consacrée à la démonstration et à la validation des performances d'un cœur dédié à l'incinération des actinides mineurs et à la transmutation des produits de fission. Le démonstrateur est alors désigné par le vocable de XADT (eXperimental Accelerator Driven Transmuter) [38] [39].

1.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons rappelé l'origine ainsi que les quantités de déchets nucléaires issus du parc électro-nucléaire français avant de présenter les réacteurs hybrides et leurs particularités neutroniques permettant une réduction efficace de la radiotoxicité des déchets nucléaires. Nous avons également donné quelques éléments de neutroniques dans le cadre des réacteurs hybrides pour caractériser le couplage source-cœur et notamment à partir des protons source. Nous avons alors souligné l'importance pour la sûreté de réaliser une mesure en temps réel du coefficient de multiplication effectif ; une simple mesure du gain étant insuffisante pour garantir la sûreté. Enfin, nous avons présenté le démonstrateur basé sur les réflexions antérieures de la société Framatome ANP qui ont abouti à définir des propositions d'options techniques pour les éléments essentiels. Le choix en faveur d'un réacteur à spectre de neutrons rapides utilisant des combustibles solides, tels que ceux développés pour les surgénérateurs. La réalisation d'un module de spallation avec une cible liquide en alliage de plomb-bismuth ou solide en tungstène adaptée à une intensité du faisceau de protons de 10 mA en vue de tester la résistance des matériaux à des niveaux de puissance et de flux proches de ceux atteints dans un incinérateur industriel. L'utilisation d'un caloporteur gaz (hélium) pour le massif sous-critique pour assurer une synergie possible avec les réacteurs à haute température tout en conservant la possibilité d'un caloporteur au sodium ou au plomb-bismuth. Enfin, l'option d'une cuve de grandes dimensions a été envisagée pour pouvoir déplacer les assemblages de combustible à l'intérieur de

la cuve sans procéder à son ouverture et ainsi assurer la flexibilité du démonstrateur. A partir de ces options techniques, nous allons, dans les chapitres suivants, simuler le comportement neutronique du démonstrateur en vue de sa caractérisation et de son optimisation.

Chapitre 2

Optimisation neutronique d'un réacteur hybride de démonstration et caractérisation des flux et des débits de dose

Dans ce chapitre, nous allons décrire les caractéristiques techniques du démonstrateur proposé ainsi que la modélisation adoptée. Ces caractéristiques permettront une approche plus détaillée conduisant à optimiser les paramètres géométriques et à caractériser, dans un premier temps, l'influence des matériaux puis à optimiser le couplage entre la source de spallation et le cœur sous-critique.

2.1 Modélisation détaillée

Dans le but de limiter les incertitudes liées aux simplifications de géométrie (composition homogène par exemple), nous avons opté pour une modélisation la plus précise et la plus fine possible. Les simulations sont réalisées dans ce cadre avec le code de calcul MCNPX 2.1.5 dont une présentation est donnée en annexe A. La géométrie décrite à l'aide d'une interface développée au sein du groupe permet de la paramétrer complètement et par conséquent sa reconstruction automatique. L'ensemble des assemblages est modélisé de manière hétérogène avec la présence des gaines autour du combustible, des fils entre les crayons ainsi que l'ensemble du module de spallation, du réflecteur, des protections neutroniques et de la cuve.

2.1.1 Optimisation du pas des tubes hexagonaux (TH)

Pour réduire l'espace situé entre le faisceau et le cœur constitué d'un pavage hexagonal, nous avons étudié l'optimisation du pas du réseau et cherché une expression, résolue numériquement, entre les rayons intérieur et extérieur du cœur et le pas du réseau de tubes hexagonaux de manière à minimiser cet espace libre. Le pas du réseau est défini comme la distance entre les centres de tubes hexagonaux contigus.

Pour optimiser le pas des tubes hexagonaux, nous avons considéré la quantité relative R suivante :

$$R = \frac{\text{Surface perdue}}{\text{Surface du module de spallation}} \quad (2.1)$$

$$R = \frac{\text{Surface de pavage non construit} - \text{Surface du module de spallation}}{\text{Surface du module de spallation}} \quad (2.2)$$

Dans cette expression, la surface perdue correspond à l'espace libre entre le module de spallation et le cœur, et la surface de pavage non construit correspond à la surface définie par les assemblages hexagonaux retirés de la partie centrale pour placer le module de spallation (voir la figure 2.1).

A rayon du module de spallation fixé, cette quantité R est décroissante en moyenne lorsque le pas diminue avec des discontinuités importantes (figure 2.2). Il est donc intéressant de prendre un pas qui minimise la surface perdue relative. Pour un pas de 13.93 cm, on minimise le volume perdu entre le module de spallation de 29 cm de rayon et les assemblages du cœur. Dans la suite, nous allons conserver ce pas pour les tubes hexagonaux.

2.1.2 Optimisation de la proportion de caloporteur (He) à l'intérieur des tubes hexagonaux (TH)

Des études thermohydrauliques [40], il résulte une proportion volumique de caloporteur à l'intérieur des tubes hexagonaux de 50 %. Dans le but d'obtenir une proportion volumique de gaz d'au moins 50 % à l'intérieur d'un tube hexagonal (de manière à assurer un refroidissement suffisant des aiguilles de combustible), nous avons paramétré l'évolution de cette proportion en fonction des rayons d'un fil et d'une aiguille de combustible gainée (figure 2.3). Les fils sont placés entre les crayons de manière à espacer les crayons et à assurer la rigidité de l'assemblage.

Caractérisation analytique de la proportion de gaz

Pour étudier l'intérieur du tube hexagonal, on définit un pas réduit du réseau noté p^* qui permet de s'affranchir de l'épaisseur du tube hexagonal et de l'espace entre les tubes hexagonaux (TH).

$$p^* = \text{pas} - 2 \times \text{épaisseur TH} - \text{épaisseur entre TH} \quad (2.3)$$

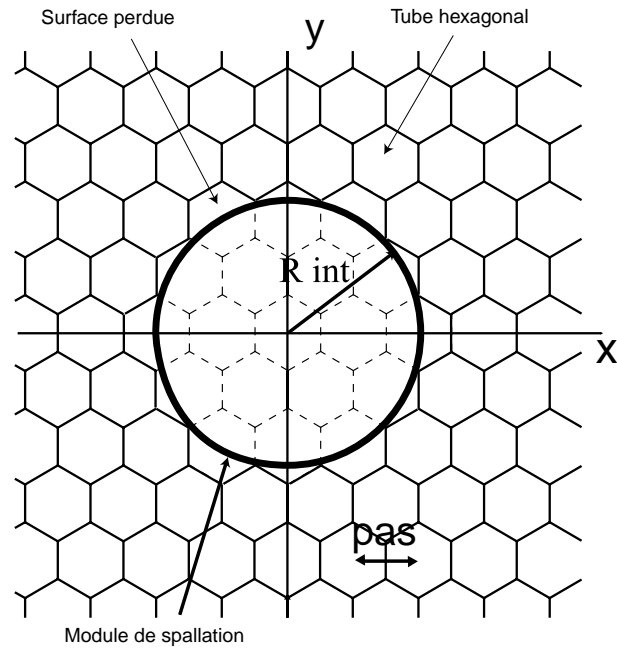


FIG. 2.1 – Représentation de l'insertion du module de spallation au sein du maillage hexagonal d'assemblages, avec en pointillé les assemblages retirés.

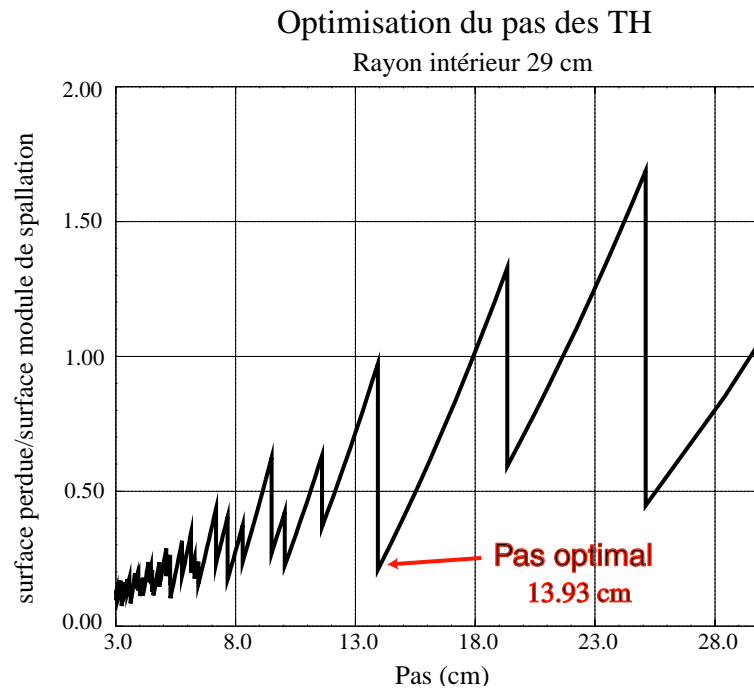


FIG. 2.2 – Evolution du rapport $R = \frac{\text{Surface perdue}}{\text{Surface du module de spallation}}$ (voir texte) en fonction du pas des tubes hexagonaux (TH).

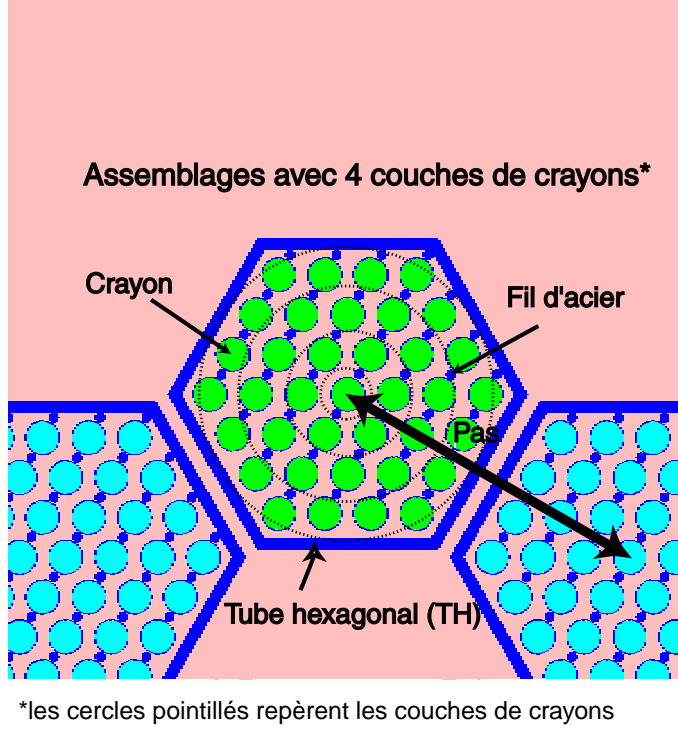


FIG. 2.3 – Modélisation des tubes hexagonaux pour 4 couches de crayons ($n=4$).

A l'intérieur du tube hexagonal, on trouve une relation entre le pas réduit du réseau (p^*) qui est constant, le rayon d'une aiguille de combustible (r_c), le rayon du fil qui l'entoure (r_f) et le nombre de couches (n) formées par les aiguilles. Dans notre modélisation, les fils sont considérés comme rectilignes le long des aiguilles de combustible.

$$p^* = \sqrt{3}[(2n - 1)r_c + 2nr_f + \delta r] \quad (2.4)$$

δr correspond à l'espace entre le dernier fil et le coin de l'hexagone.

On a $\delta r = (\frac{2}{\sqrt{3}} - 1)r_f$ d'où :

$$p^*(n, r_c, r_f) = \sqrt{3}[(2n - 1)r_c + (2n + \frac{2}{\sqrt{3}} - 1)r_f] \quad (2.5)$$

dont on extrait le rayon du fil :

$$r_f(n, r_c) = \frac{p^* - \sqrt{3}(2n - 1)r_c}{\sqrt{3}(2n - 1) + 2} \quad (2.6)$$

La surface de gaz à l'intérieur d'un tube hexagonal est donnée par :

$$S_{gaz}(p^*, n, r_c, r_f) = \text{Surface intérieure TH} - (\text{Surface aiguilles combustible} + \text{Surface fils}) \quad (2.7)$$

La proportion de gaz à l'intérieur des tubes hexagonaux, donnée par le rapport entre la surface de gaz et la surface intérieure, est donc une fonction du pas réduit, du rayon des fils, du rayon des crayons et du nombre de couches de crayons. Pour une proportion de gaz, un nombre de couches de crayons et un pas du réseau choisis indépendamment, les rayons des fils et des crayons sont imposés par les relations 2.5 et 2.7. Les dimensions des différents composants obtenues pour un assemblage avec 3, 4 et 5 couches de crayons et 50 % d'hélium à l'intérieur des tubes hexagonaux sont données dans le tableau 2.1.

Nombre de couches de crayons	3	4	5
Nombre de crayons	19	37	61
Proportion d'hélium (%)	50.	50.	50.
Rayon du crayon (cm)	1.005	0.714	0.552
Epaisseur de la gaine (cm)	0.050	0.050	0.050
Rayon des pastilles de combustible (cm)	0.955	0.664	0.502
Rayon d'un fil (cm)	0.359	0.274	0.223

TAB. 2.1 – *Caractéristiques d'un assemblage hexagonal pour un pas de 13.93 cm et 50 % d'hélium avec 3, 4 et 5 couches de crayons à l'intérieur.*

Ces dimensions des composants de l'assemblage seront les références pour les différentes configurations de cœurs envisagées ultérieurement. En remarque, il est clair que les échanges thermiques entre les crayons et l'hélium ne seront pas les mêmes pour ces configurations mais une simple adaptation de la pression du gaz permettrait de compenser ces différences.

2.2 Optimisation géométrique et influence des matériaux

2.2.1 Optimisation du rapport hauteur sur diamètre du cœur

Optimisation par simulation

Pour cette étude, le cœur est constitué de combustible MOX (U/Pu) enrichi à 26 % en Pu. Dans le but de déterminer la géométrie qui optimise la source de neutrons, nous avons évalué le nombre de fissions de la première génération induites par neutron source ($\frac{k_1}{\nu}$), à masse de combustible constante en fonction du rayon extérieur du cœur avec un rayon intérieur fixé à 29 cm. La masse de combustible est de 4.13 t dont 1.07 t de plutonium. Il apparaît sur la figure 2.4 que l'optimum pour l'utilisation des neutrons source est obtenu pour un rayon extérieur de 75 cm et une hauteur de 150 cm de la partie combustible du cœur, soit un rapport hauteur sur diamètre de 1. Cette configuration géométrique assure un bon confinement de la source en limitant les fuites de neutrons source et correspond à un cœur de type orthocylindrique. Dans la suite, nous nous placerons dans cette configuration de cœur.

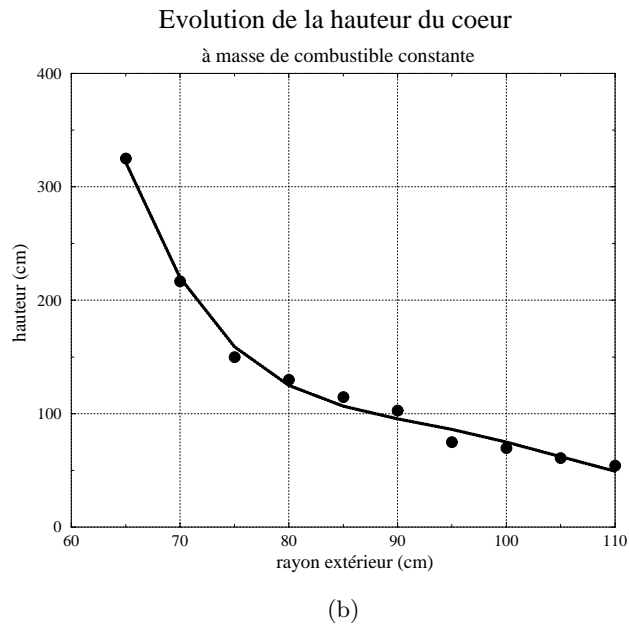
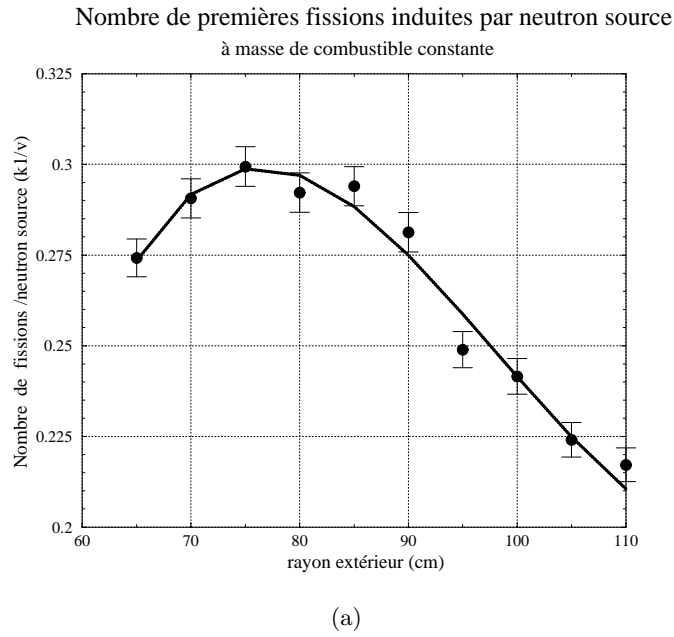


FIG. 2.4 – Evolution du nombre de fissions induites par neutron source (a) et de la hauteur du combustible (b) à masse de combustible constante en fonction du rayon extérieur du cœur. Les courbes servent à guider l'œil.

Calcul de la hauteur par optimisation de la surface de fuite du cœur

La surface de fuite totale (S_f) est donnée en fonction du rayon extérieur (R_{ext}) et de la hauteur (h) du cœur par l'équation :

$$S_f = 2\pi R_{ext}^2 + 2\pi h R_{ext} \quad (2.8)$$

Nous allons chercher la hauteur du cœur qui minimise la surface de fuite à volume constant en fonction des rayons intérieur et extérieur du cœur.

Le volume du cœur est donné par l'équation :

$$V = \pi h (R_{ext}^2 - R_{int}^2) \quad (2.9)$$

avec R_{int} le rayon intérieur du cœur, soit :

$$h = \frac{V}{\pi(R_{ext}^2 - R_{int}^2)} \quad (2.10)$$

En remplaçant la hauteur obtenue par (2.10) dans la relation (2.8), la surface de fuite est donnée par :

$$S_f = 2\pi R_{ext}^2 + \frac{2V R_{ext}}{R_{ext}^2 - R_{int}^2} \quad (2.11)$$

La minimisation de la surface de fuite à volume et à rayon intérieur constants par rapport au rayon extérieur est obtenue pour :

$$\frac{\partial S_f}{\partial R_{ext}} = 0 \Leftrightarrow \frac{2\pi R_{ext}^5 - 4\pi R_{ext}^3 R_{int}^2 + 2\pi R_{ext} R_{int}^4 - V R_{ext}^2 - V R_{int}^2}{(R_{ext}^2 - R_{int}^2)^2} = 0 \quad (2.12)$$

La solution de $\frac{\partial S_f}{\partial R_{ext}} = 0$ est :

$$V = 2\pi R_{ext} \frac{(R_{ext}^2 - R_{int}^2)^2}{R_{ext}^2 + R_{int}^2} \quad (2.13)$$

En remplaçant le volume donné par la relation (2.9), on obtient la hauteur optimisée en fonction des rayons intérieur et extérieur :

$$h = \frac{2R_{ext}(R_{ext}^2 - R_{int}^2)}{R_{ext}^2 + R_{int}^2} \quad (2.14)$$

La hauteur ainsi définie est donnée sur la figure 2.5 en fonction du rayon extérieur pour un rayon intérieur du cœur de 29 cm. On constate que pour les rayons extérieurs supérieurs à 1 m, la hauteur obtenue qui minimise la surface de fuite est proche de la hauteur d'un cœur orthocylindrique.

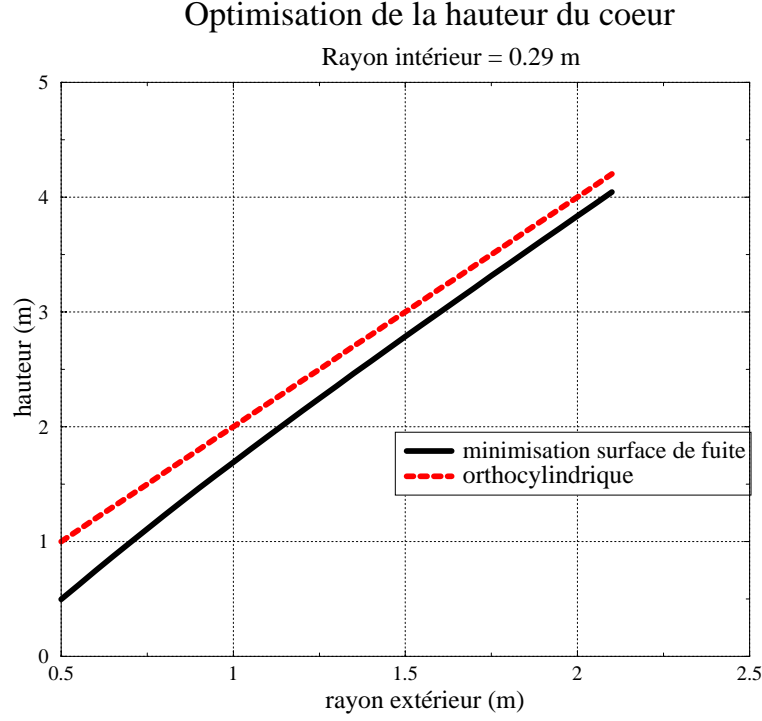


FIG. 2.5 – Comparaison des dimensions d'un coeur orthocylindrique et d'un coeur qui minimise la surface de fuite en fonction du rayon extérieur.

Définitions des flux moyens et des sections efficaces moyennes

Le coeur de hauteur h et de rayon compris entre R_{int} et R_{ext} est maillé en géométrie cylindrique de coordonnées (r, θ, z) suivant le rayon avec un pas (δr) et suivant la hauteur avec un pas (δh) . On définit alors des cellules qui forment des couronnes de section rectangulaire de côtés δh et δr . A l'intérieur de chacune de ces cellules, noté c_{ij} avec i compris entre 1 et $i_{max} = \frac{R_{ext}-R_{int}}{\delta r}$ et j compris entre 1 et $j_{max} = \frac{h}{\delta h}$, on définit les flux moyens pour chacune de ces c_{ij} cellules de volume respectif V_{ij} comme :

$$\phi_{c_{ij}} = \frac{1}{V_{ij}} \int_{E=0}^{+\infty} \left(\int_{r=r_i}^{r=r_{i+1}} \int_{\theta=0}^{\theta=2\pi} \int_{z=h_j}^{z=h_{j+1}} \phi(r, \theta, z, E) dV \right) dE \quad (2.15)$$

quels que soient $1 \leq i \leq i_{max}$ et $1 \leq j \leq j_{max}$, avec $\phi(r, \theta, z, E)$ le flux différentiel en $(n/(cm^2.p \text{ source.eV}))$.

De même, à l'intérieur de chacune de ces cellules (c_{ij}), on définit les sections efficaces moyennes comme :

$$\sigma_{c_{ij}} = \frac{\int_{E=0}^{+\infty} \left(\int_{r=r_i}^{r=r_{i+1}} \int_{\theta=0}^{\theta=2\pi} \int_{z=h_j}^{z=h_{j+1}} \sigma(E) \phi(r, \theta, z, E) dV \right) dE}{\int_{E=0}^{+\infty} \left(\int_{r=r_i}^{r=r_{i+1}} \int_{\theta=0}^{\theta=2\pi} \int_{z=h_j}^{z=h_{j+1}} \phi(r, \theta, z, E) dV \right) dE} \quad (2.16)$$

avec $\sigma(E)$, la section efficace microscopique (barn).

Influence du réflecteur

Un rôle important, dans l’optimisation du cœur, est joué par le réflecteur. Nous avons donc cherché l’épaisseur optimale du réflecteur radial. Nous avons considéré un cœur orthocylindrique, avec la cible de référence. De plus, nous avons comparé un réflecteur où les crayons des assemblages sont en acier inoxydable “Z6CNDT17-13” (solution de référence) et un réflecteur où les crayons des assemblages sont en nickel naturel. La composition isotopique du nickel naturel est rappelée dans le tableau 2.2 et celle de l’acier inoxydable “Z6CNDT17-13” dans le tableau 2.3. Nous avons évalué l’évolution du k_{eff} en fonction de l’épaisseur du réflecteur radial (figure 2.6). Les caractéristiques du cœur sont données dans le tableau 2.4. Ce cœur correspond au cœur de dimensions minimales respectant la condition sur l’enrichissement en plutonium ($< 30\%$). L’enrichissement est de 24.1% car la construction des assemblages est réalisée de manière discrète par ensemble de 6 ou 12 assemblages pour assurer la symétrie du cœur. Les caractéristiques du cœur restent fixées (dimensions, enrichissement), seule l’épaisseur du réflecteur radial est variable pour caractériser la variation de la réactivité (k_{eff}). La taille des réflecteurs axiaux demeure constante avec les valeurs de référence données dans le paragraphe 1.3.

Acier	Optifer	Z6CNDT17-13
Elément	Proportion atomique (%)	Proportion atomique (%)
C	0.463	<5ppm
N	0.1188	1.0934
Ti	<5ppm	0.4664
V	0.2838	<5ppm
Cr	9.9461	18.2546
Mn	0.5061	1.5244
Fe	88.3704	63.4346
Ni	<5ppm	13.3186
Cu	<5ppm	0.3075
Mo	<5ppm	1.6004
Ta	0.0215	<5ppm
W	0.2904	<5ppm

TAB. 2.2 – Proportions des différents éléments présents dans l’acier optifer et dans l’acier inoxydable “Z6CNDT17-13”.

Il apparaît dans tous les cas une épaisseur seuil du réflecteur à partir de laquelle le k_{eff} reste pratiquement constant. Cette épaisseur seuil est de l’ordre de 0.5 m. Au delà de cette distance, les neutrons diffusant ont très peu de chance de revenir dans la zone multiplicatrice pour créer une fission, la probabilité de fuir ou d’être capturé étant prépondérante. La présence

Isotope	Proportion atomique (%)
^{58}Ni	68.077
^{60}Ni	26.223
^{61}Ni	1.140
^{62}Ni	3.634
^{64}Ni	0.0926

TAB. 2.3 – *Composition isotopique du nickel naturel.*

Type de cible	Référence
Enrichissement en Pu %	24.1
Rayon extérieur (cm)	85
Rayon intérieur (cm)	29
Hauteur (cm)	170

TAB. 2.4 – *Paramètres globaux du cœur avec la cible de référence.*

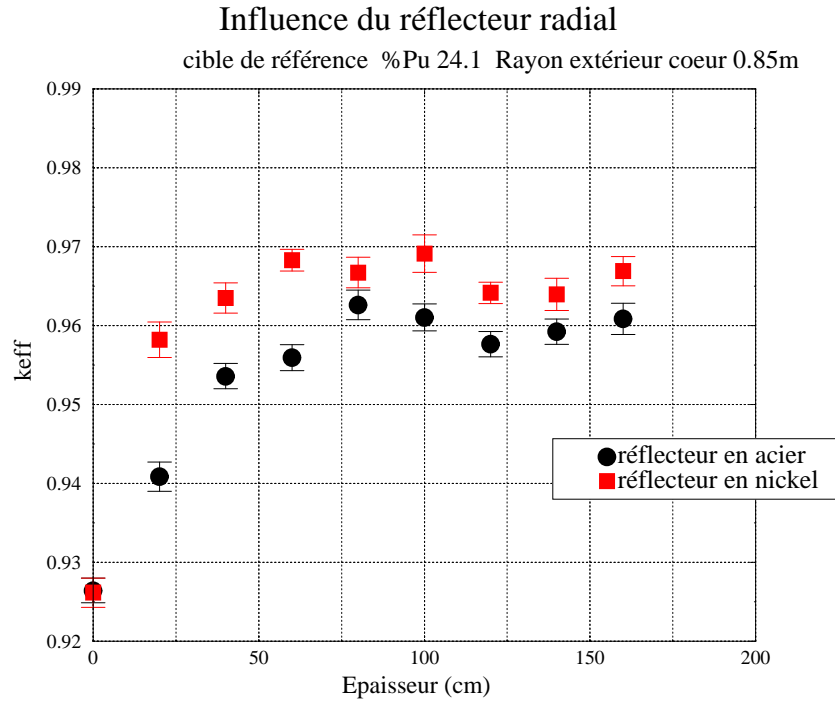


FIG. 2.6 – *Evolution du k_{eff} en fonction de l'épaisseur du réflecteur (en nickel naturel et en acier inoxydable "Z6CNDT17-13").*

ou non d'un réflecteur après cette épaisseur seuil n'influence plus la multiplication globale des neutrons. Par ailleurs, il est à noter un albédo supérieur dans le cas du réflecteur en nickel. En effet, le nickel naturel présente une région de résonances dans sa section efficace de capture (n,γ) moins étendue que l'acier inoxydable "Z6CNDT17-13" comme l'atteste la figure 2.7. Par ailleurs, la section efficace de diffusion élastique pour les neutrons est de l'ordre de 20 barns pour le nickel contre 10 barns pour l'acier dans la région $10^{-3} - 10$ eV. Le nickel naturel présente donc de meilleures propriétés neutroniques de réflexion que l'acier inoxydable "Z6CNDT17-13". De même, l'utilisation d'un réflecteur à base de chrome semble envisageable.

D'autre part, le réflecteur thermalise les neutrons et donc modifie le spectre énergétique des neutrons en périphérie du cœur. Cette modification du spectre énergétique des neutrons influe sur les sections efficaces moyennes. Il faut également ajouter que les sections efficaces moyennes des éléments dont la section efficace présente un seuil en énergie vont baisser en périphérie du cœur sous l'influence du réflecteur. C'est notamment le cas des sections efficaces de fission d'actinides mineurs tels que les ^{241}Am et ^{243}Am contrairement à celle du ^{239}Pu dont la section efficace augmente pour les neutrons thermiques (évolution en $\frac{1}{\sqrt{E}}$ pour $E < 0.01$ eV). La variation de la section efficace moyenne de fission dans le cas du ^{239}Pu est de l'ordre de 10 % pour un réflecteur en acier inoxydable "Z6CNDT17-13" de 1. m d'épaisseur comme le montre la figure 2.8.

Bilans neutroniques détaillés

Maintenant que nous avons caractérisé et optimisé les principaux éléments du cœur, nous allons évaluer la répartition des différentes réactions en regard des matériaux présents dans l'ensemble du réacteur. Pour ce faire, nous avons considéré un cœur orthocylindrique qui optimise la probabilité des neutrons source à induire des fissions et minimise la surface de fuite, des tubes hexagonaux avec 4 couches de crayons et 50 % d'hélium à l'intérieur et un réflecteur de 1. m d'épaisseur en acier. Les autres paramètres globaux du cœur sont rappelés dans le tableau 2.4. La répartition des matériaux est donnée dans le tableau 2.5 et la coupe horizontale du démonstrateur de référence simulé est représentée sur la figure 2.9.

Type de matériau	Proportion volumique (%)
Caloporteur (He) dans le cœur	47.50
Caloporteur (He) dans un TH	50.
Acier	20.10
Combustible enrichi à 24.1% en Pu	32.40

TAB. 2.5 – *Proportions volumiques des différents matériaux dans le cœur.*

Dans le démonstrateur, deux types d'acier sont utilisés. L'ensemble des structures en acier

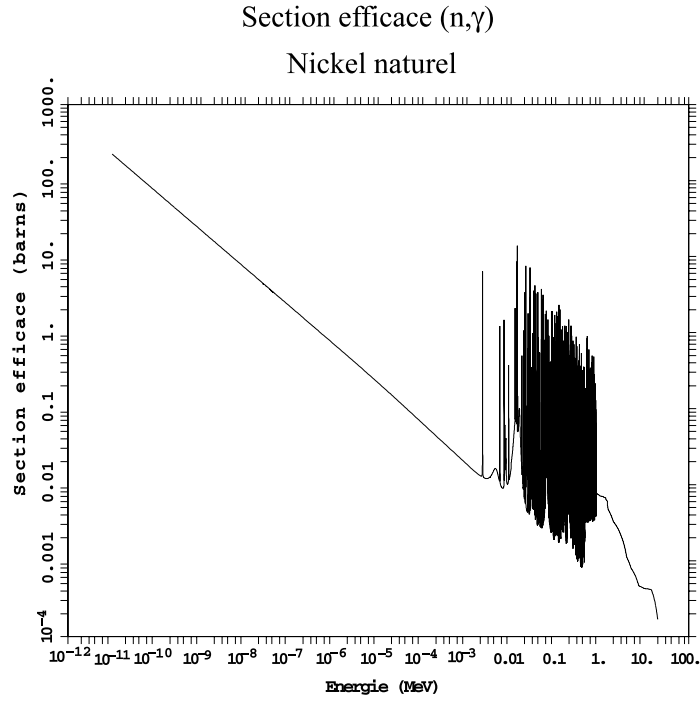
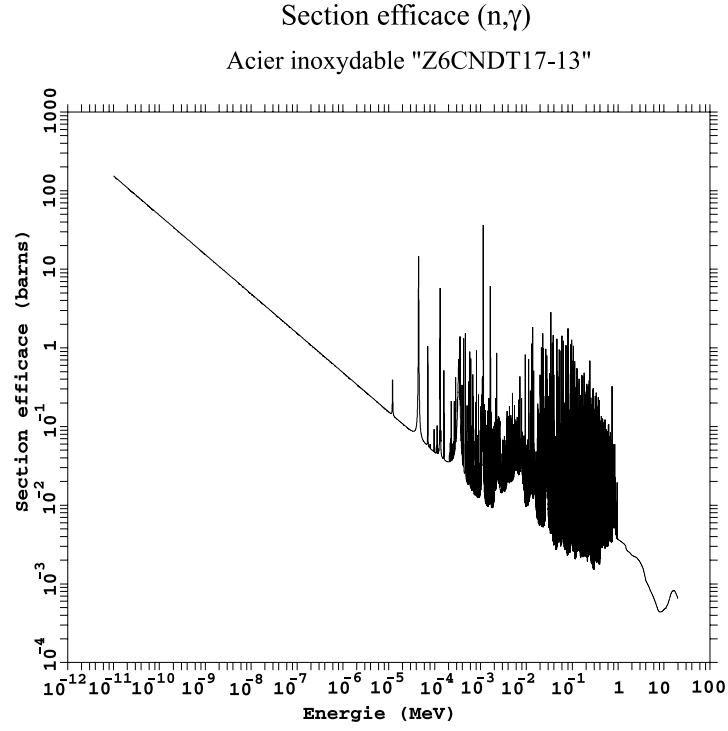


FIG. 2.7 – Sections efficaces (n, γ) de l'acier inoxydable "Z6CNDT17-13" (a) et du nickel naturel (b) issues de la base de données nucléaires ENDF/B-VI.

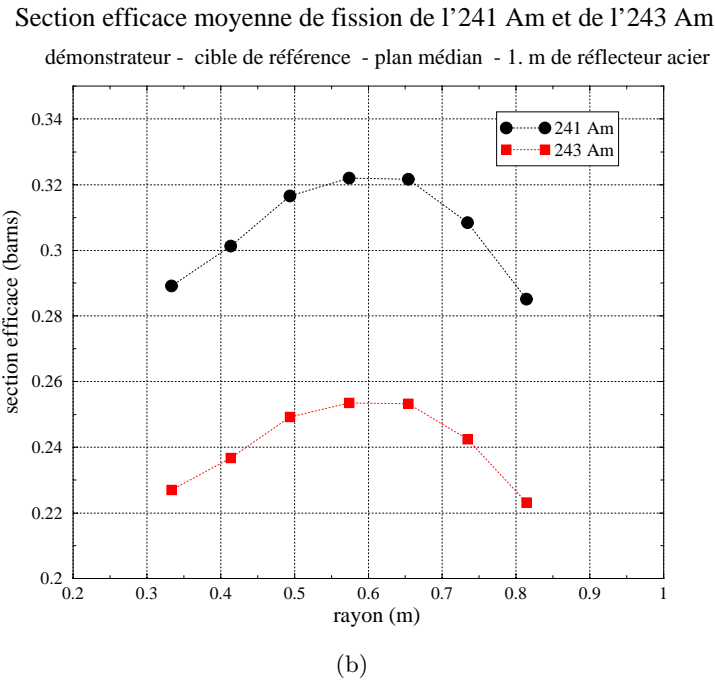
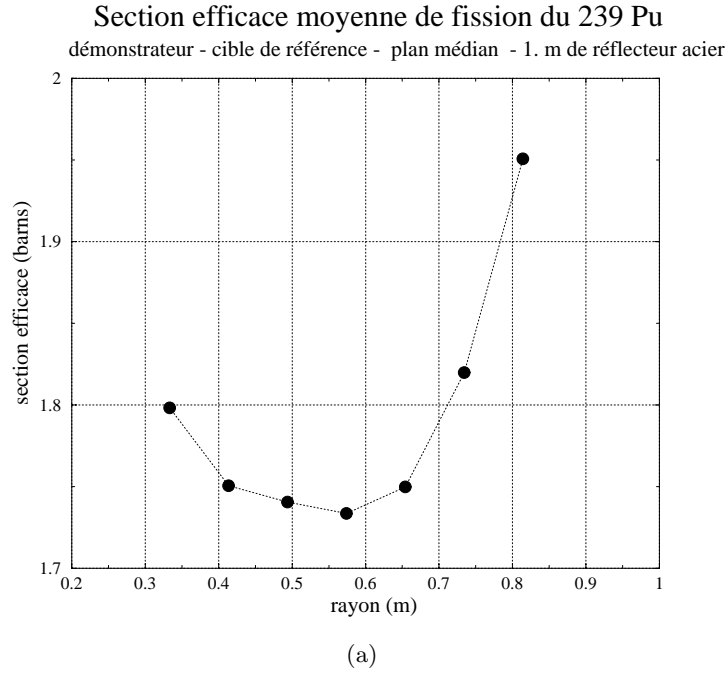


FIG. 2.8 – Influence d'un réflecteur en acier de 1 mètre d'épaisseur sur les sections efficaces moyennes de fission du ^{239}Pu (a) et des ^{241}Am et ^{243}Am (b) dans le plan médian du cœur en fonction du rayon.

Démonstrateur caloporteur gaz (Hélium)

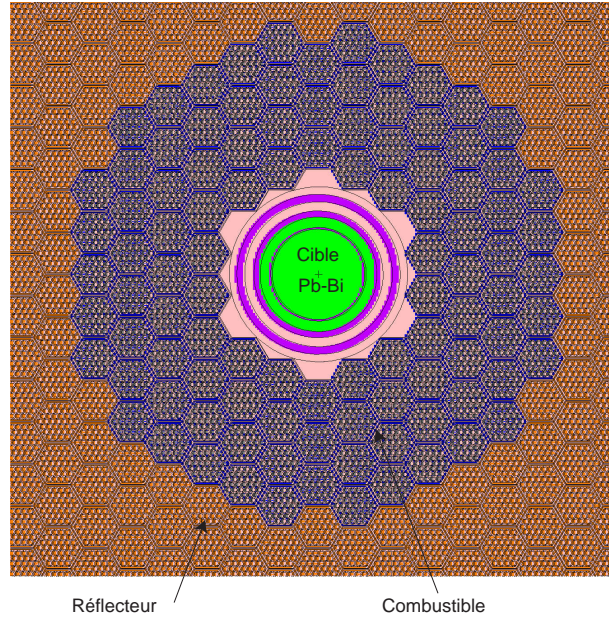


FIG. 2.9 – Coupe horizontale du démonstrateur de référence simulé.

(support de cœur, cuve, protections neutroniques, tube faisceau,...) est réalisé à base d'acier optifier. Pour les gaines, les fils et les tubes hexagonaux, un acier inoxydable (acier "Z6CNDT17-13") est utilisé.

Les bilans neutroniques dans l'ensemble du réacteur sont donnés dans le tableau 2.6. La présence de l'acier est défavorable pour la neutronique du cœur. En effet, de nombreuses captures stériles ont lieu au sein des éléments constituant l'acier. Si l'on compare la répartition des captures avec les proportions des éléments dans l'acier, on remarque la forte influence d'éléments tels que le molybdène, le tungstène ou le manganèse qui capturent fortement malgré une faible proportion atomique. Par exemple, le molybdène, qui ne représente que 1.6 % (voir tableau 2.2) des éléments présents dans l'acier inoxydable, contribue pour environ 14 % (voir tableau 2.6) des réactions (n,γ) . Mais, cet acier est utilisé pour sa bonne résistance aux dommages sous flux de neutrons. Cet élément est notamment présent dans la constitution des tubes hexagonaux. Un cœur sans tubes hexagonaux, constitué par exemple d'un combustible sous forme de boulets avec une coquille en céramique, éviterait ces captures inutiles et néfastes au bilan neutronique. Les captures dans l'acier du module de spallation représentent 2.4 % de l'ensemble des captures dans l'acier. Par ailleurs, les bilans neutroniques indiquent que les captures dans le plomb-bismuth restent globalement faibles (de l'ordre de 0.25 % des captures soit 0.005 capture/fission), largement compensées par la création de neutrons par réaction $(n,2n)$. En effet, le plomb-bismuth

réalise de l'ordre de 40 % des réactions $(n,2n)$ soit la création de 0.008 neutron/fission. Enfin, il est intéressant de connaître la transmission des neutrons source de la cible au combustible. En effet, ils doivent traverser une quantité importante de plomb-bismuth (cible), ainsi que de l'acier (enceinte de la cible et du faisceau) avant d'atteindre le combustible. De plus, leur spectre énergétique est plus “dur” que celui des neutrons de fission. La figure 2.10 compare les captures pour les neutrons source à celles de la totalité des neutrons (neutrons source et neutrons issus de fission). On constate que l’ “utilisation” des neutrons source est meilleure que celle de l'ensemble des neutrons :

- les captures dans l'acier sont moindres pour les neutrons source,
- les captures dans le combustible sont supérieures pour les neutrons source,
- et leur absorption dans la cible (Pb-Bi) est plus importante ce qui contribue à la création de neutrons par réaction $(n,2n)$.

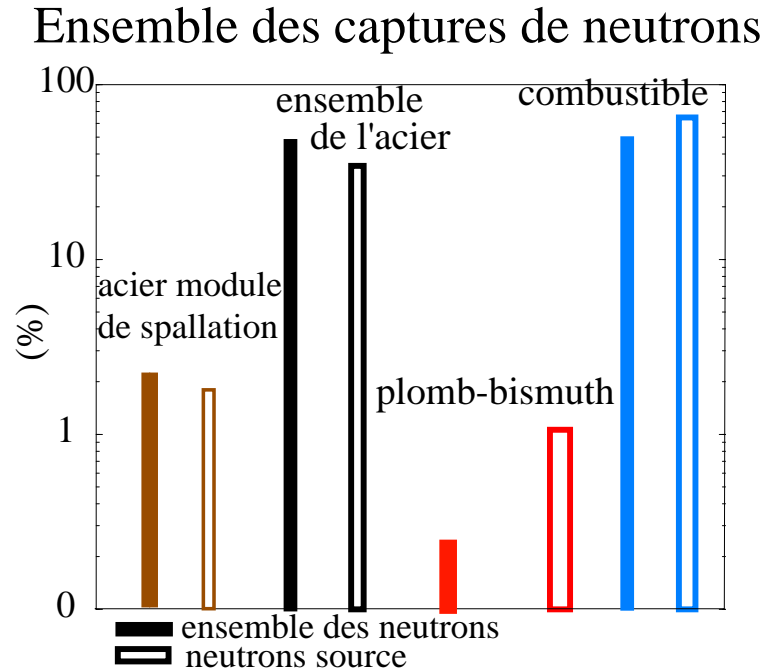


FIG. 2.10 – Comparaison des captures radiatives (n,γ) pour les neutrons source et pour l'ensemble des neutrons dans l'ensemble du cœur.

2.2.2 Influence du type de caloporteur

Le caloporteur doit répondre aux exigences suivantes [41] [42]:

- assurer l'extraction de la chaleur, ce qui impose une conductivité thermique et une chaleur spécifique élevées,
- minimiser le ralentissement des neutrons (pour garantir un spectre de neutrons rapides),

Bilan neutronique			
	Créations par fission	Disparitions	
		par fission	par isotope %
Source	0.104	-	-
Fission	2.92	1.	²³⁵ U 2.09% ²³⁸ U 9.12% ²³⁸ Pu 1.48% ²³⁹ Pu 62.23% ²⁴⁰ Pu 7.23% ²⁴¹ Pu 15.88% ²⁴² Pu 1.60% ²⁴¹ Am 0.34%
(<i>n</i> ,2 <i>n</i>)	0.0184	0.0092	^{nat} Pb <u>17.%</u> ²⁰⁹ Bi <u>23.85%</u> ²³⁸ U 52.15% ^{nat} Fe 7.%
(<i>n</i> , γ)	-	1.99 (comprenant 0.048 (<i>n</i> , γ) dans le module de spal- lation)	¹⁶ O 0.40% ^{nat} Cr 9.50% ²⁵ Mn 4.23% ^{nat} Fe 19.03% ^{nat} Ni 8.15% ^{nat} Mo 13.88% ^{nat} W 4.19% ^{nat} Pb <u>0.11%</u> ²⁰⁹ Bi <u>0.14%</u> ²³⁵ U 0.48% ²³⁸ U 25.0% ²³⁸ Pu 0.44% ²³⁹ Pu 7.65% ²⁴⁰ Pu 3.82% ²⁴¹ Pu 1.24% ²⁴² Pu 1.06% ²⁴¹ Am 0.65%
Fuites	-	0.022	-

TAB. 2.6 – *Bilan neutronique détaillé dans l'ensemble du réacteur avec la cible de référence (en caractères gras l'acier, italique et souligné la cible en plomb-bismuth et normal le combustible).*

- posséder une faible section efficace d'absorption des neutrons,
- présenter une activation réduite sous flux de neutrons,
- avoir un pouvoir corrosif limité.

Seuls les métaux liquides (Pb, Pb-Bi, Na..) et les gaz (He, CO₂), présentent des caractéristiques répondant aux exigences précédentes. Les métaux liquides présentent une capacité à extraire la chaleur supérieure aux gaz mais leur corrosion sur les métaux est élevée. De plus, la grande densité d'un élément comme le plomb nécessite une forte puissance de pompage. L'utilisation du plomb, dont la température de fusion est de 328 °C nécessiterait un chauffage important des canalisations pour éviter sa solidification. L'utilisation de l'eutectique plomb-bismuth, dont la température de fusion est abaissée à 128 °C, résout partiellement ce problème, mais l'introduction d'une quantité importante de ²⁰⁹Bi engendre des problèmes d'activation notamment à cause de la formation de ²¹⁰Po. Par contre, d'un point de vue neutronique, on doit s'attacher à obtenir dans le cas du plomb ou du plomb-bismuth un coefficient de contre-réaction à l'effet de vide négatif (cf paragraphe 4.1.2) qui dépend notamment de la taille du cœur. Le sodium considéré comme une solution alternative au gaz présente plusieurs inconvénients en termes de sûreté. D'une part, sa forte réactivité chimique avec les oxydes, l'eau, l'air, nécessite une étanchéité totale des circuits et une surveillance accrue rendue difficile, comme pour l'ensemble des métaux liquides, par son opacité. D'autre part, son activation produit notamment du ²²Na et du ²⁴Na. Par contre, l'expérience acquise est importante ce qui n'est pas le cas dans les pays occidentaux pour le plomb ou le plomb-bismuth dont l'utilisation nécessiterait de nombreuses études complémentaires. Les caloporteurs gazeux et notamment l'hélium présentent quant à eux certains avantages. Le premier est qu'ils ne peuvent changer d'état, ce qui est important quand on sait que l'accident de référence des réacteurs à neutrons rapides (RNR) est l'ébullition de sodium. Le deuxième est la transparence du gaz qui facilite le contrôle et le diagnostic des circuits. L'hélium est parfaitement inerte et n'interagit que très peu avec les neutrons. Cette faible interaction permet d'assurer un spectre de neutrons rapides mais supprime le rôle de protection neutronique que peut assurer le plomb par exemple. L'inconvénient des caloporteurs gazeux est leur relative faible capacité de transfert thermique. Pour compenser cela, il est nécessaire de les faire circuler sous haute pression (60-70 bars pour le démonstrateur) et en conséquence on s'expose à l'accident de dépressurisation. Un système de sécurité actif redondant et secouru doit être présent pour suppléer la convection naturelle possible avec du plomb par exemple et évacuer la puissance résiduelle. Par ailleurs, le coefficient de contre-réaction à l'effet de vide est inexistant dans le cas de l'hélium ce qui impose des temps de réaction rapides en cas d'incident de perte de caloporteur surtout avec l'utilisation d'un combustible à faible proportion de neutrons retardés ($\beta_{eff} < 300$ pcm) ou à effet Doppler limité (cf paragraphe 4.1.2). Pour le démonstrateur, l'hélium est le caloporteur de référence, le sodium pouvant être une alternative bien que son utilisation puisse inquiéter l'opinion publique. Du point de vue neutronique, nous nous sommes

contentés de comparer l'influence sur la réactivité du caloporteur hélium et du caloporteur en plomb. Nous avons considéré un cœur constitué de MOX (U/Pu) enrichi à 24 % en Pu avec la cible de référence. Dans le but de quantifier le rôle joué par le plomb, nous avons remplacé l'hélium initialement présent par du plomb. Le k_{eff} , donné dans le tableau 4.3, calculé avec le caloporteur plomb est supérieur de 9000 pcm, pour 47.50 % de caloporteur dans le cœur, à celui calculé avec le caloporteur hélium. Cette différence est la conséquence de diffusions importantes et de la "recirculation" des neutrons (effet réflecteur) avec le plomb. Cet effet du plomb sur la réactivité montre l'importance d'assurer le confinement du plomb-bismuth de la cible en toutes circonstances.

Type de caloporteur	Hélium	Plomb
Volume de caloporteur (%)	47.50	47.50
Volume d'acier (%)	20.10	20.10
Volume de combustible (%)	32.40	32.40
k_{eff} (Δk_{eff})	0.971(0.002)	1.062(0.002)

TAB. 2.7 – Influence du type de caloporteur sur le k_{eff} .

2.3 Optimisation du couplage source - cœur

L'amélioration du couplage peut être la conséquence soit d'une configuration géométrique de la source plus performante en terme de limitation des fuites de neutrons, des captures et d'une amélioration du rendement des réactions de spallation, soit en modifiant le spectre énergétique des neutrons source de manière à augmenter leur efficacité à induire des fissions et des réactions (n,2n).

2.3.1 Optimisation de la cible

Présentation de la cible fontaine

La cible proposée par la société Framatome ANP est une cible en plomb-bismuth avec fenêtre dont l'encombrement au centre du cœur est important (rayon de 34 cm initialement puis ramené à 29 cm en réduisant l'épaisseur de la structure de confinement de 5 cm à 2.5 cm). Dans le but de réduire cet ensemble volumineux au centre du cœur qui a des conséquences néfastes sur la neutronique et qui apparaît surdimensionné pour le cœur envisagé, nous avons imaginé une cible plus compacte. Pour rendre la cible plus compacte, il faut s'affranchir de la limitation sur la densité maximale de courant dans la fenêtre qui oblige à défocaliser le faisceau (faisceau de 10 cm de diamètre).

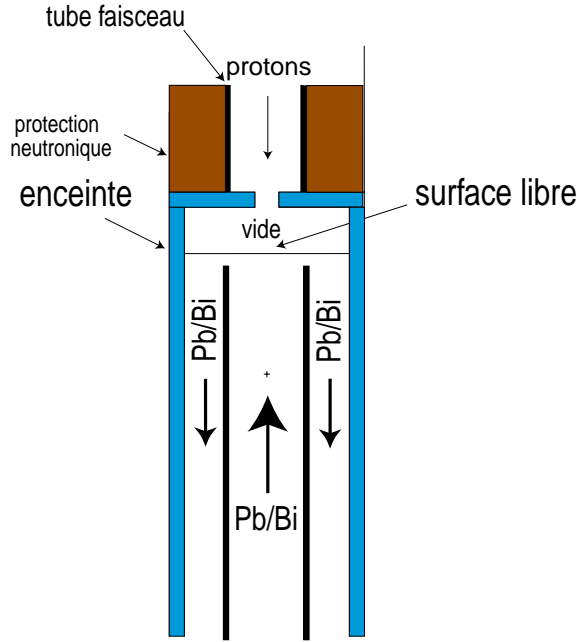


FIG. 2.11 – Coupe verticale de la cible fontaine sans fenêtre.

Nous avons envisagé une cible sans fenêtre dont une coupe verticale de la géométrie simulée est donnée sur la figure 2.11. De plus, la durée de vie de la fenêtre, suite à une irradiation importante, risque d'être un facteur limitant et son remplacement périodique engendrerait des problèmes de radioprotection. La cible sans fenêtre est constituée d'une colonne de plomb-bismuth liquide qui s'écoule dans le sens ascendant à l'intérieur d'un cylindre d'acier. Le plomb-bismuth retombe par gravité le long du cylindre intérieur telle une fontaine. Dans la suite, cette cible sera désignée sous le terme de cible fontaine. Elle occupe une surface équivalente à 7 assemblages et son diamètre extérieur total est de 33 cm. En comparaison, la cible de référence a un diamètre de 58 cm et occupe une surface équivalente à 19 assemblages (voir la coupe horizontale de la cible sans fenêtre sur la figure 2.12).

La cible sans fenêtre permet d'utiliser un faisceau plus focalisé. En effet, le diamètre du faisceau dans le cas de la cible fontaine est ramené à 2 cm contre 10 cm pour la cible de référence. Une étude thermohydraulique est nécessaire pour caractériser l'évacuation de chaleur au niveau de la cible et notamment le risque de vaporisation du plomb-bismuth au niveau de l'impact. Une approche élémentaire donne une estimation de l'élévation de la température du plomb-bismuth. La variation de température est donnée par :

$$\Delta T = \frac{W}{\rho v S C_p} \quad (2.17)$$

avec :

- ΔT (°C) : la variation de température,

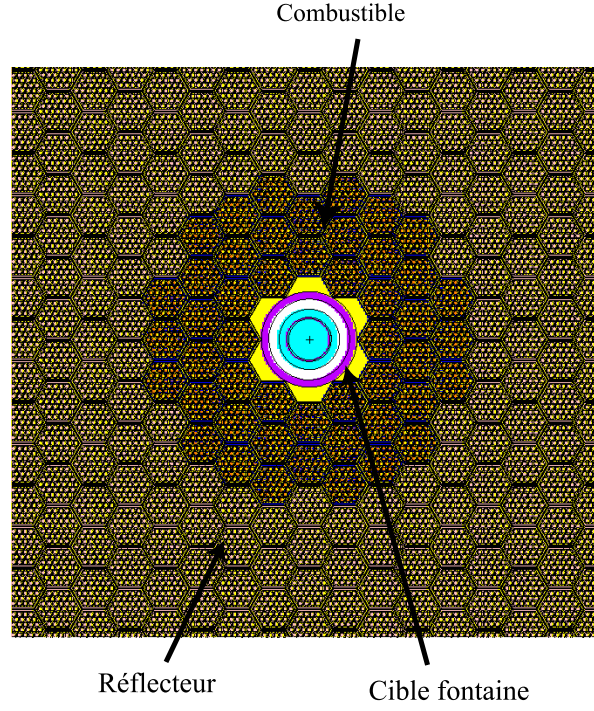


FIG. 2.12 – Coupe horizontale du cœur (assemblages combustibles et réflecteurs) avec la cible fontaine sans fenêtre.

- W (Watt) : la puissance du faisceau,
- $C_p = 260 \text{ J/kg/}^\circ\text{C}$ (J/kg/ $^\circ\text{C}$) : la chaleur spécifique du Pb-Bi,
- $\rho = 11.34.10^3 \text{ (kg/m}^3\text{)}$: la densité du Pb-Bi,
- v (m/s) : la vitesse de montée du Pb-Bi,
- S (m^2) : la section de la cible.

Si l'on considère une cible de 5 cm de rayon et une vitesse ascendante du plomb-bismuth de 1 m/s, on obtient une élévation de température de 43.2°C par MW de puissance du faisceau. L'augmentation de température maximale prévue pour le plomb-bismuth avec la cible de référence est de 150°C . En se basant sur cette valeur et l'élévation de température calculée, l'intensité maximale acceptable est de 3.5 mA ce qui est une valeur suffisante pour un cœur de 100 MWth avec un k_{eff} minimum de 0.90. Une augmentation de la vitesse de montée du plomb-bismuth permettrait d'atteindre une intensité supérieure. Il est à noter que la suppression de la fenêtre élimine la contrainte liée à sa fragilisation. Il en demeure que des études thermohydrauliques complémentaires et précises devront être réalisées pour valider ce concept (risque d'évaporation du plomb-bismuth, tension de surface,...).

Influence du type de cible

Le cœur étant plus compact avec la cible fontaine, pour conserver la même réactivité, l'enrichissement est passé à 29.8 % de plutonium pour cette nouvelle disposition des assemblages. La comparaison a été effectuée entre la cible de référence et la cible fontaine pour un même k_{eff} . Les caractéristiques des cœurs et des cibles sont résumées dans le tableau (2.8).

Type cible	Référence	Fontaine
k_{eff} (Δk_{eff})	0.971 (0.002)	0.971 (0.002)
Puissance thermique (ΔP_{th}) (MW)	154.(12.)	58.(9.)
Enrichissement Pu %	24.1	29.8
Rayon extérieur (cm)	85.	58.
Rayon intérieur (cm)	29.	16.
Hauteur (cm)	170.	116.
Nombres d'assemblages	90	48
Masse de combustible (t)	7.4	2.7
Masse Pu (t)	1.8	0.8
Puissance linéique max (W/cm)	375.	375.
Intensité faisceau (ΔI) (mA/MW)	0.018 (0.001)	0.014 (0.002)
Rayon du faisceau (cm)	5.	1.
Energie des protons (GeV)	1.	1.
Matériau cible	Pb-Bi	Pb-Bi
φ^* ($\Delta \varphi^*$)	0.83 (0.15)	0.94 (0.18)
C (ΔC)	8.25 (0.03)	9.52 (0.03)

TAB. 2.8 – Comparaison des caractéristiques neutroniques des cœurs avec la cible de référence et la cible fontaine.

Avec la cible fontaine, on obtient un cœur plus compact qui réalise un meilleur couplage entre la source et le cœur comme l'indique les valeurs de C, φ^* et de l'intensité du faisceau. Le gain sur le couplage est de l'ordre de 15 % ce qui est confirmé par l'impact de la cible fontaine sur le bilan neutronique du cœur, donné dans le tableau 2.9. L'enrichissement plus élevé induit une répartition légèrement différente des fissions entre l'uranium et le plutonium. Enfin, la puissance thermique à puissance linéique fixée est nettement inférieure conséquence d'un cœur plus compact qui ne comporte que 48 assemblages contre 90 pour le cœur avec la cible de référence. L'influence de la cible sur les profils de puissance et de flux sera discutée ultérieurement.

Bilan neutronique			
	Créations par fission	Disparitions	
		par fission	par isotope %
Source	0.081	-	-
Fission	2.94	1.	²³⁵ U 1.51% ²³⁸ U 7.69% ²³⁸ Pu 1.50% ²³⁹ Pu 63.35% ²⁴⁰ Pu 8.21% ²⁴¹ Pu 15.33% ²⁴² Pu 1.92% ²⁴¹ Am 0.46%
(<i>n</i> ,2 <i>n</i>)	0.0158	0.0078	<u>^{nat}Pb</u> <u>15.54%</u> <u>²⁰⁹Bi</u> <u>28.26%</u> ²³⁸ U 51.36% ^{nat}Fe 4.84%
(<i>n</i> , γ)	-	1.99	¹⁶ O 0.40% ^{nat}Cr 11.10% ²⁵ Mn 4.98% ^{nat}Fe 22.32% ^{nat}Ni 9.65% ^{nat}Mo 16.96% ^{nat}W 1.09% <u>^{nat}Pb</u> <u>0.03%</u> <u>²⁰⁹Bi</u> <u>0.07%</u> ²³⁵ U 0.28% ²³⁸ U 18.0% ²³⁸ Pu 0.4% ²³⁹ Pu 7.0% ²⁴⁰ Pu 3.6% ²⁴¹ Pu 1.27% ²⁴² Pu 1.11% ²⁴¹ Am 0.60%
Fuites	-	0.035	-

TAB. 2.9 – *Bilan neutronique détaillé du réacteur avec la cible fontaine (en caractères gras l'acier, italique et souligné la cible en plomb-bismuth et normal le combustible).*

Influence du module de spallation

Configuration de la cible	k_{eff} (Δk_{eff})
Référence avec module de spallation	0.9458 (0.0007)
Référence sans module de spallation	0.9246 (0.0007)
Fontaine avec module de spallation	0.9672 (0.0010)
Fontaine sans module de spallation	0.9624 (0.0013)

TAB. 2.10 – *Influence du module de spallation en fonction du type de cible sur le k_{eff} .*

Un point important pour la sûreté est de caractériser l'influence du module de spallation sur la valeur du k_{eff} du cœur pour les deux cibles envisagées. Nous avons donc réalisé une simulation du cœur avec le module de spallation retiré. Il apparaît un effet de contre-réaction négatif suite à la suppression du module de spallation de plus de 2000 pcm pour la cible de référence et de près de 500 pcm pour la cible fontaine. Cette perte de réactivité est liée à la perte du plomb-bismuth dont l'effet réflecteur sur les neutrons provenant du cœur est notable. Cet effet est plus marqué pour la cible de référence dont la quantité de plomb-bismuth est plus importante que pour la cible fontaine.

2.3.2 Etude d'un amplificateur de source

Dans ce paragraphe, nous allons étudier un système plus complexe basé sur une amplification de la source pour obtenir un couplage plus performant.

Effet d'amplification

Tout d'abord, commençons par étudier un ensemble de systèmes simples afin de mieux comprendre l'influence de la géométrie et du spectre énergétique des neutrons source sur le couplage. Ce premier système, traité en géométrie sphérique, s'inspire d'une étude préliminaire introduite dans la référence [23] que nous allons étudier et simuler plus en détail avec MCNP.

Considérons un système sphérique constitué d'une source centrale ponctuelle de neutrons entourée de deux coquilles sphériques (voir figure 2.13). Ce système académique et simplifié permet une meilleure compréhension du couplage en réduisant le nombre de paramètres géométriques et neutroniques. Les paramètres géométriques sont dans le cas de coquilles sphériques :

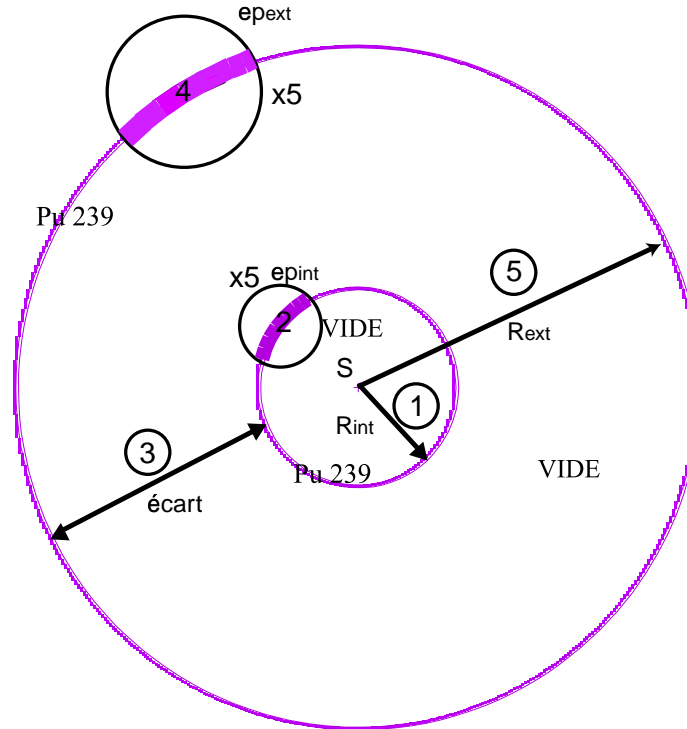
- le rayon externe de la coquille interne, noté R_{int} , (repéré par 1 sur la figure 2.13) et l'épaisseur de la coquille interne, notée ep_{int} , (repéré par 2),
- l'écart entre les deux coquilles (repéré par 3),
- l'épaisseur de la coquille externe, notée ep_{ext} , (repéré par 4)

Ces paramètres sont suffisants pour décrire la géométrie de ce système. On définit également le rayon interne de la coquille externe, noté R_{ext} (repéré par 5) sur la figure 2.13. Les paramètres neutroniques d'entrée sont le spectre énergétique de la source de neutrons ainsi que le k_{eff} de l'ensemble.

Nos observables sont :

- le k_s de l'ensemble,
- le k_{eff} et le k_s de la coquille interne seule, notés respectivement $k_{effcoqint}$ et $k_{scoqint}$,
- le k_{eff} et le k_s de la coquille externe seule, notés respectivement $k_{effcoqext}$ et $k_{scoqext}$.

Pour commencer, nous avons étudié le cas de deux coquilles sphériques constituées de ^{239}Pu séparées par du vide (figure 2.13). La coquille interne contient la source ponctuelle en son centre et du vide. L'épaisseur de la coquille externe est recalculée pour obtenir un k_{eff} constant lorsque l'écart entre les coquilles est diminué.



Notations :

- (1) R_{int} : rayon extérieur de la coquille interne
- (2) ep_{int} : épaisseur de la coquille interne
- (3) écart : écart entre les coquilles
- (4) ep_{ext} : épaisseur de la coquille externe
- (5) R_{ext} : rayon intérieur de la coquille externe
- S : source ponctuelle de neutrons

FIG. 2.13 – *Système de deux coquilles sphériques constituées de plutonium 239 séparées par du vide avec une source ponctuelle centrée.*

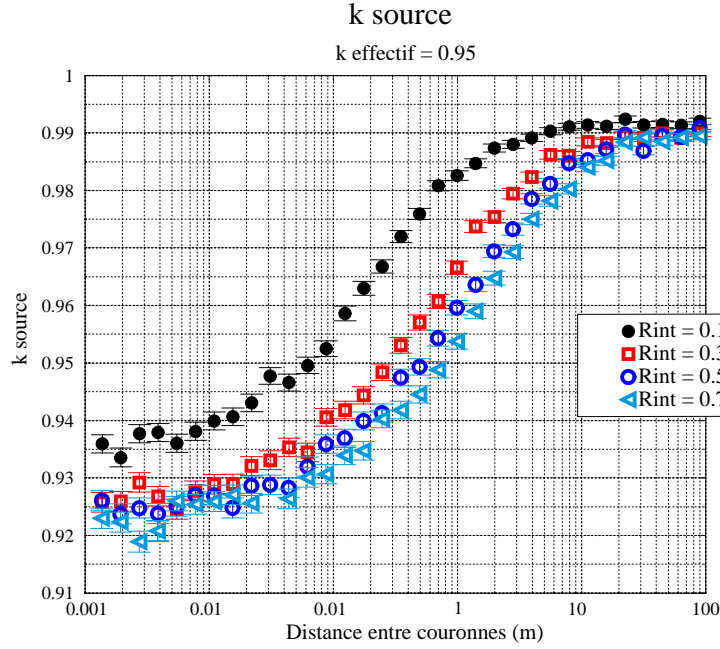


FIG. 2.14 – Evolution du k_s à k_{eff} constant en fonction de l'écart entre les coquilles pour différents rayons de la coquille interne.

Il apparaît sur la figure 2.14 un effet géométrique lié à l'éloignement des deux coquilles. Lorsque l'écart est faible, les fissions sont réparties également entre les deux coquilles de dimensions équivalentes ; ce qui équivaut au cas d'un seul milieu. Lorsque l'écart augmente, les premières fissions ont lieu dans la coquille interne puis les suivantes dans la coquille externe. Si l'écart est important les neutrons produits dans la coquille externe ont une probabilité faible de retourner dans la coquille interne. Par conséquent, la quasi-totalité des fissions se situe dans la coquille externe et le système est découplé. La première coquille se comporte alors comme un amplificateur de source. Ce découplage géométrique apparaît clairement sur la figure 2.15 qui représente la distribution des fissions entre les deux coquilles lorsque la source est stabilisée (i.e les facteurs de multiplication k_i sont égaux) pour différents écarts entre les coquilles interne et externe.

L'effet de découplage induit une variation des valeurs de k_{eff} et k_s des coquilles interne et externe représentée sur la figure 2.16. Une étude analytique de cet effet de découplage est donnée dans l'annexe B.

Ce découplage ne devient effectif qu'à partir d'une distance entre les coquilles de l'ordre de quelques mètres, ce qui semble assez peu réaliste pour un système basé sur ce principe.

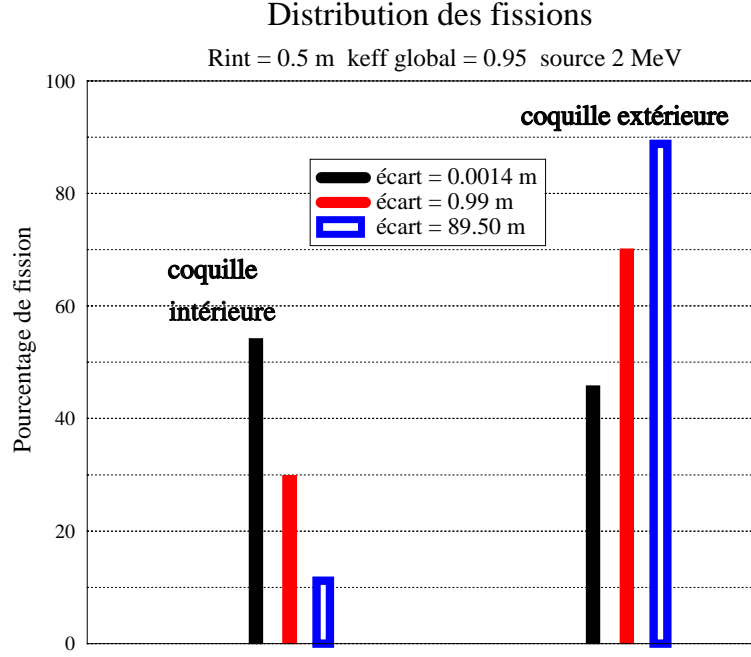


FIG. 2.15 – *Distribution des fissions entre les coquilles une fois la source stabilisée pour différents écarts, avec la source de 2 MeV centrée et un rayon de la coquille interne de 0.5 mètre.*

2.3.3 Application à un réacteur hybride

Bien qu'un découplage géométrique soit difficilement réalisable, des systèmes à double cœur ont été proposés par différentes équipes [43] [44] [45] dans le but de réduire l'intensité du faisceau de protons. Nous avons souhaité examiner ce concept à double cœur dans un objectif d'amplification de la source de neutrons. Pour assurer ce couplage, l'idée a été d'entourer le tube contenant la cible de spallation par un cylindre composé d'un combustible oxyde de MOX (U/Pu) (voir figure 2.17). Cet anneau est placé à 18 cm de l'axe du faisceau dans le canal de circulation du plomb-bismuth. L'ensemble faisceau a été dimensionné pour un faisceau de protons de 1 GeV d'intensité 10 mA ; soit une puissance de 10 MWth. Dans le but d'étudier l'influence de cet anneau sur les propriétés neutroniques du cœur, nous avons étudié différentes épaisseurs et différents enrichissements en conservant le k_{eff} global égal à 0.95. Ce type d'amplificateur de source présente un intérêt pour les réacteurs de puissance qui nécessitent des intensités de faisceau importantes. Nous allons envisager le gain apporté dans ce contexte.

Le combustible utilisé est le combustible de référence avec une concentration de 12 % de Pu dans le cœur pour augmenter l'épaisseur du cœur et se rapprocher de la configuration d'un cœur de puissance. De plus, cette concentration est proche de la concentration d'équilibre, condition nécessaire au fonctionnement d'un réacteur de puissance sans variation importante du k_{eff} et donc de l'intensité du faisceau. Par ailleurs, la hauteur de l'anneau U/Pu est déterminée par

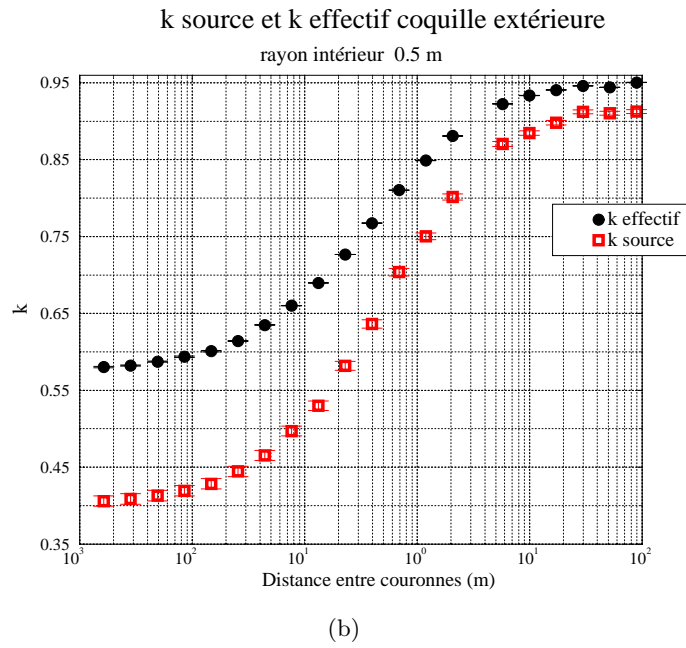
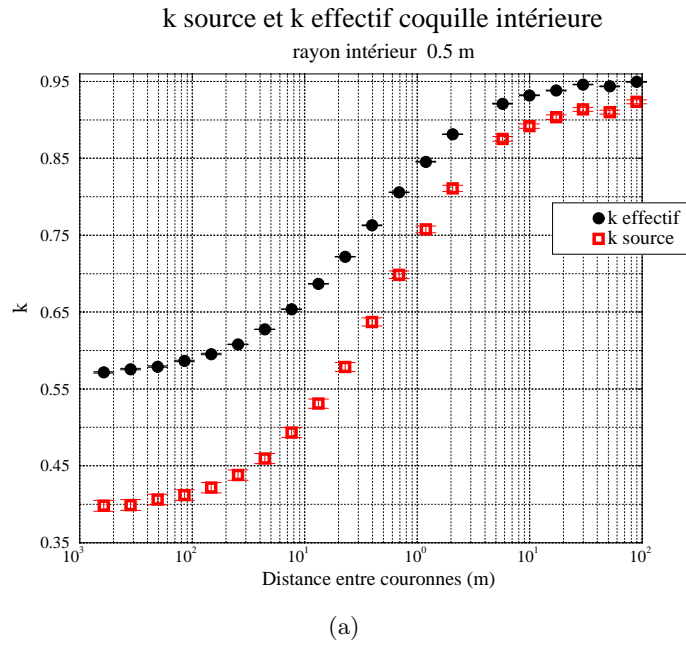


FIG. 2.16 – Evolution des valeurs de k_{eff} et k_s des coquilles interne (a) et externe (b) pour un k_{eff} global de 0.95, un rayon externe de la sphère interne de 0.5 m, et une source de 2 MeV centrée.

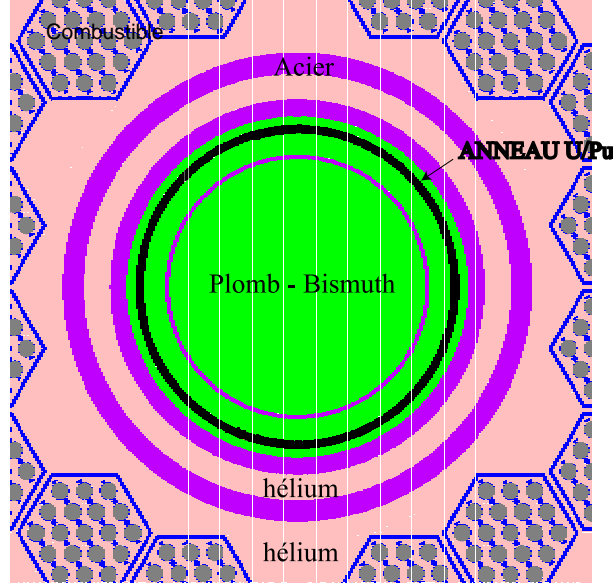


FIG. 2.17 – Visualisation de l'emplacement de l'anneau combustible entourant le tube contenant la cible de spallation.

homothétie avec la hauteur du cœur :

$$h_a = h \frac{r_a}{R_{int}} \quad (2.18)$$

avec :

- h_a : la hauteur de l'anneau U/Pu,
- r_a : le rayon intérieur de l'anneau U/Pu,
- h : la hauteur du cœur et
- R_{int} : le rayon intérieur du cœur.

Résultats

Nous avons étudié l'influence de l'anneau pour deux enrichissements différents en Pu, à savoir 30 % et 100 % de plutonium et pour un k_{eff} global fixé à 0.95. Les résultats obtenus et l'ensemble des caractéristiques du cœur sont reportés dans le tableau 2.11.

L'effet de l'anneau de Pu permet un gain de près de 50 % sur la valeur du coefficient φ^* . La diminution de l'enrichissement de l'anneau U/Pu entraîne une augmentation de la taille du cœur pour conserver un k_{eff} constant, et permet de réduire la puissance déposée dans l'anneau qui passe de 8. MW pour 100 % à 3.75 MW pour 30 %. Il est important de comparer la réactivité apportée par ce cylindre de combustible. Elle représente environ 3200 pcm dans le cas de la concentration de 100 % de Pu, et 1000 pcm dans le cas de la concentration de 30 % de Pu.

Configurations	Avec cylindre 100 % Pu	Avec cylindre 30 % Pu
$k_{eff} (\Delta k_{eff})$	0.951 (0.001)	0.952 (0.001)
Enrichissement en Pu %	12.	12.
$\varphi^*(\Delta\varphi^*)$	1.59 (0.15)	1.54 (0.14)
Epaisseur cylindre (m)	0.008	0.016
Hauteur cylindre (m)	1.79	1.97
Rayon intérieur cylindre (m)	0.18	0.18
Masse cylindre (kg)	162.	351.
Rayon extérieur cœur (m)	1.59	1.77
Hauteur cœur (m)	2.98	3.35
Puissance déposée dans le cylindre (MW)	8.078	3.76
Densité de Puissance dans le cylindre (W/cm3)	469.5	105.3
Intensité du faisceau (mA/100MW)	1.78	1.75

TAB. 2.11 – *Influence du cylindre U/Pu enrichi à 30 % et 100 % de plutonium sur le couplage source-cœur (φ^*).*

Lorsque l'on augmente l'épaisseur de l'anneau, on améliore la valeur du coefficient φ^* (figure 2.18(a)). Celui-ci atteint une valeur proche de 2 pour une épaisseur de un centimètre avec 100 % de plutonium et de 4 cm pour 30 %, soit une amélioration importante de la valeur initiale. L'intensité du faisceau décroît à 1.5 mA/100MWth au lieu de 3 mA/100MWth sans amplification mais la puissance dans l'anneau devient alors importante et son refroidissement risque d'être problématique (figure 2.18(b)). La puissance volumique est supérieure à 1000 W/cm³ pour l'anneau enrichi à 100 % en plutonium ce qui rend cette hypothèse irréalisable et de l'ordre de 350 W/cm³ pour l'anneau enrichi à 30 % pour obtenir une valeur de φ^* proche de deux.

Gain neutronique

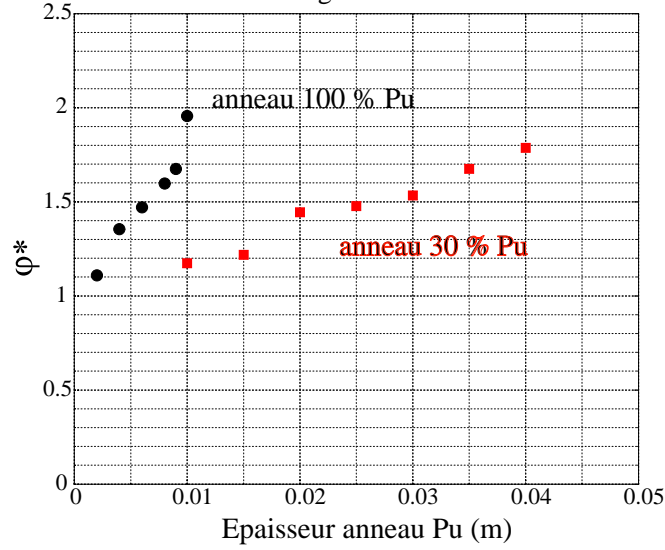
Dans le but de quantifier le gain en neutrons source apporté par le cylindre U/Pu, nous avons étudié l'ensemble faisceau seul (c'est à dire sans les assemblages combustible du cœur) avec et sans le cylindre U/Pu pour une concentration en plutonium de 30 %. L'ensemble des résultats est rassemblé dans le tableau (2.12).

Configurations	Avec cylindre	Sans cylindre
$k_{eff} (\Delta k_{eff})$	0.3126(0.0002)	-
Epaisseur du cylindre (m)	0.020	-
Hauteur du cylindre (m)	1.74	-
Rayon intérieur du cylindre (m)	0.18	-
Masse cylindre (kg)	392.5	-
Nombre n/p source	39.23	26.70
Gain (%) en nombre de n/p source	+47	0
Nombre de n de fission/p source	8.46	0

TAB. 2.12 – Gain neutronique du cylindre U/Pu pour 30 % de Pu.

Le gain est apporté par les neutrons de fission créés dans le cylindre U/Pu. Il apparaît un gain d'environ 50 % sur le nombre de neutrons sortant du module de spallation pour le cylindre U/Pu mais pour une masse de près de 400 kg de combustible. Les neutrons de fission créés par l'anneau s'ajoutent aux neutrons source et modifient le spectre en énergie comme le montre la figure 2.19. Le spectre avec l'anneau comprend le spectre de spallation auquel s'additionne un spectre de fission. Le spectre ainsi créé présente une composante épithermique plus importante.

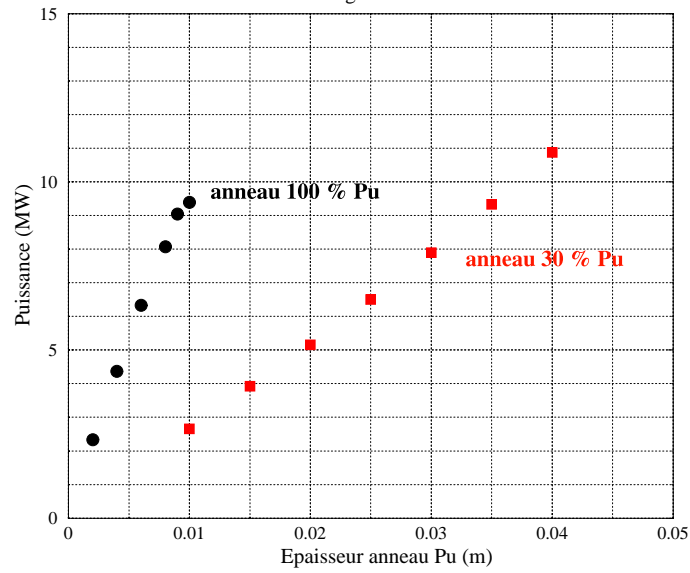
Evolution de φ^* avec l'épaisseur de l'anneau Pu
keff global = 0.95



(a)

Puissance dans l'anneau U/Pu

keff global = 0.95



(b)

FIG. 2.18 – Evolution de φ^* (a) pour un k_{eff} global de 0.95 et de la puissance déposée (b) dans l'anneau U/Pu enrichi à 30 % et 100 % de plutonium en fonction de l'épaisseur de l'anneau.

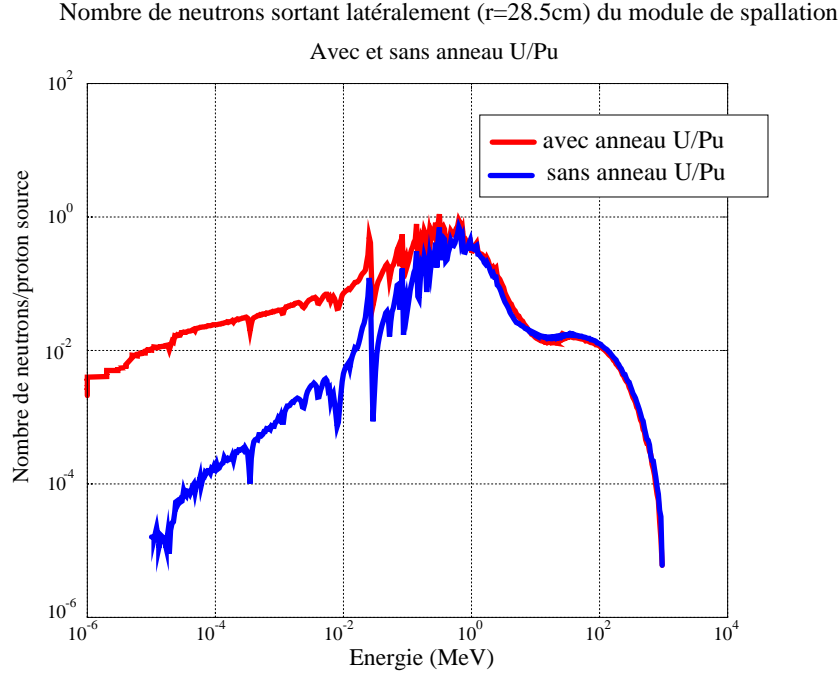


FIG. 2.19 – *Spectre énergétique des neutrons sur la surface latérale du module de spallation.*

Durée de vie de l'anneau

La durée de vie du cylindre U/Pu est donnée par les équations d'évolution des matériaux. Pour simplifier, si on ne considère que l' ^{238}U et le ^{239}Pu et en négligeant la décroissance radioactive de ces éléments, l'évolution est donnée par le système différentiel :

$$\begin{cases} \frac{dN_8(t)}{dt} = -\sigma_{a,8}N_8(t)\bar{\phi} \\ \frac{dN_9(t)}{dt} = \sigma_{c,8}N_8(t)\bar{\phi} - \sigma_{a,9}N_9(t)\bar{\phi} \end{cases}$$

avec :

- $N_8(t=0)$ et $N_9(t=0)$ le nombre d'atomes d' ^{238}U et le nombre d'atomes de ^{239}Pu connus à l'instant initial,
- $\sigma_{a,8}$ la section efficace moyenne d'absorption de l' ^{238}U (0.325 barn),
- $\sigma_{c,8}$ la section efficace moyenne de capture de l' ^{238}U (0.29 barn),
- $\sigma_{a,9}$ la section efficace moyenne d'absorption du ^{239}Pu (2.39 barns) et
- $\bar{\phi}$ le flux moyen de neutrons intégré sur l'énergie dans l'anneau ($\bar{\phi} = 2.10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ dans l'anneau avec une concentration en ^{239}Pu de 100 % et $\bar{\phi} = 1.62.10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ avec une concentration de 30 % en ^{239}Pu).

On obtient, après intégration de ce système, une réduction de moitié du nombre d'atomes de ^{239}Pu au bout d'environ 15 ans dans le cas d'une concentration en ^{239}Pu de 100 %, et au bout d'une centaine d'années dans le cas d'une concentration en plutonium de 30 % (voir figure

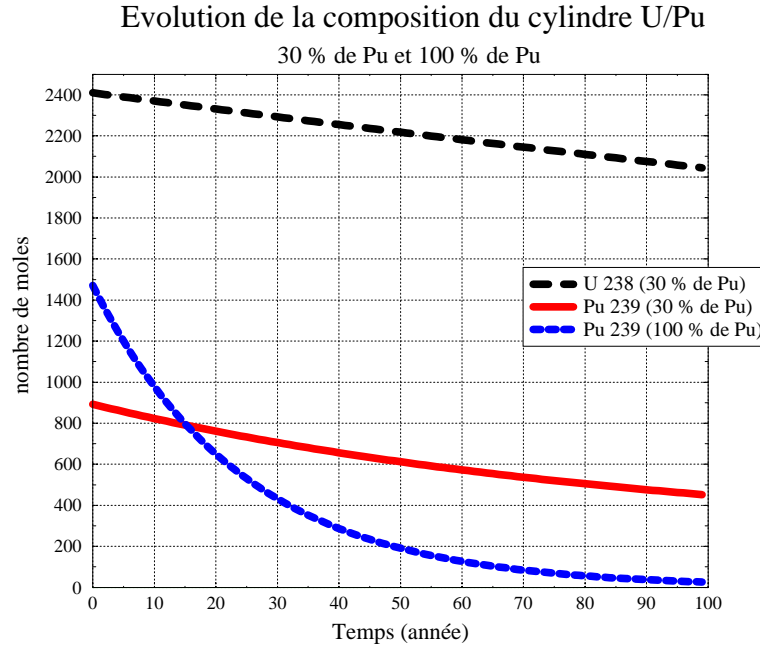


FIG. 2.20 – Evolution de la composition du cylindre U/Pu pour une concentration de 30 % et 100 % de plutonium.

2.20). Sur une période de 5 ans, la variation du nombre de moles de plutonium est de 1 % pour la concentration de 30 %, et de 8 % pour la concentration de 100 %. L'effet de régénération du ^{239}Pu par l' ^{238}U est sensible pour l'enrichissement de 30 % et son évolution est semblable à celle du combustible du cœur. En revanche, son positionnement au sein du module de spallation engendrera des problèmes d'accessibilité et de radioprotection.

2.4 Caractérisation des flux aux interfaces et des débits de dose

2.4.1 Optimisation du calcul

Dans le but de quantifier l'importance prise par les neutrons issus de neutrons de spallation sur la radioprotection du démonstrateur, nous avons étudié la propagation de ces neutrons hors de la cuve.

Pondération des cellules par importance

Le problème majeur dans un code Monte Carlo est de réduire l'erreur relative associée aux grandeurs calculées. De manière à conserver une statistique suffisante de neutrons à l'extérieur de la cuve et donc une erreur relative acceptable, les neutrons sortant du cœur sont multipliés par un facteur d'importance. Un ensemble de cellules imbriquées de poids croissant dirige préférentiellement les neutrons vers l'extérieur du cœur et compense l'atténuation du flux dans

les matériaux. Les particules qui entrent dans une cellule de plus grande importance sont “partagées”. Ce partage consiste à multiplier une particule en m particules filles (cellule d’importance m). Pour tenir compte de la modification, chaque trajet résultant se voit affecté d’un poids W/m où W est le poids de la particule mère. Inversement, les particules entrant dans une région de moindre importance subissent la “roulette russe”. La roulette russe consiste à “tuer” la particule avec une probabilité p , son poids est alors déposé dans la cellule ; si elle n’est pas “tuée” (probabilité $(1-p)$), la particule continue d’être suivie mais on lui affecte le poids $W/(1-p)$.

Coupure en énergie

De manière à extraire les neutrons de hautes énergies (> 20 MeV), on réalise un calcul avec une coupure sur les neutrons d’énergie inférieure à 10 MeV. En effet, le nombre de ces neutrons est faible devant l’ensemble des neutrons produits par fission dans le cœur. Ces neutrons de hautes énergies sont typiquement ceux qui, créés par spallation dans la cible ont traversé le cœur en interagissant faiblement.

Répartition des cellules de mesure

Les cellules sont positionnées à l’extérieur de l’enceinte. Elles sont constituées de couronnes de 50 cm de hauteur et de 2 cm d’épaisseur sur la hauteur de l’enceinte et de disques concentriques de 2 cm d’épaisseur espacés de 20 cm au-dessus et en-dessous de la cuve. Par ailleurs, à l’intérieur de l’enceinte, nous avons disposé des cellules horizontales au-dessus du cœur de manière à obtenir la dispersion des neutrons dans la cuve.

Calcul du débit d’équivalent de dose

Le calcul avec MCNPX, nous permet d’obtenir le flux moyenné à l’intérieur des cellules. La conversion du flux moyenné en débit d’équivalent de dose (DED) est donnée par :

$$DED = \int_{E=0}^{+\infty} \phi(E) h^*(10)(E) dE \quad (2.19)$$

avec :

- DED : le débit d’équivalent de dose (Sv/s),
- ϕ : le flux de neutrons ($n/cm^2.s$),
- $h^*(10)$: le facteur de conversion entre le flux et le débit de dose ambiant à 10 mm de profondeur (Sv/cm^2).

Le facteur de conversion de dose utilisé est tiré des références [46] et [47] basées sur les recommandations de la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) données dans la publication 60 [48]. Les nouvelles recommandations modifient la dépendance du facteur de qualité $Q(L)$ avec le transfert linéique d’énergie des particules chargées dans l’eau. A partir de

cette nouvelle définition, de nombreux calculs ont été réalisés pour tenir compte de cette nouvelle recommandation. La principale quantité opérationnelle recalculée, recommandée maintenant pour les mesures de radioprotection est l'équivalent de dose $H^*(10)$, qui est défini comme la dose équivalente à une profondeur de 10 mm sur l'axe principal de la sphère de référence ICRU (International Commission on Radiation Units) d'un diamètre de 30 cm irradié par un faisceau plan et parallèle de particules. La sphère "équivalent tissu" a une composition en poids de H (10.1 %), C (11.1 %), N (2.6 %) et O (76.2 %). De même, l'équivalent de dose ambiante par unité de fluence, $h^*(10)$, pour les neutrons a été recalculé par différentes équipes [46], [49], [47] et [50]. Les différents facteurs de conversion pris en compte sont donnés sur la figure 2.21. L'objectif de ce travail n'étant pas de discuter les différences obtenues pour le facteur de conversion entre les différentes publications, nous avons choisi de prendre les valeurs données dans les références [46] et [47] basées sur la publication 60 de la CIPR [48] et reportées dans le tableau C.1 de l'annexe C.

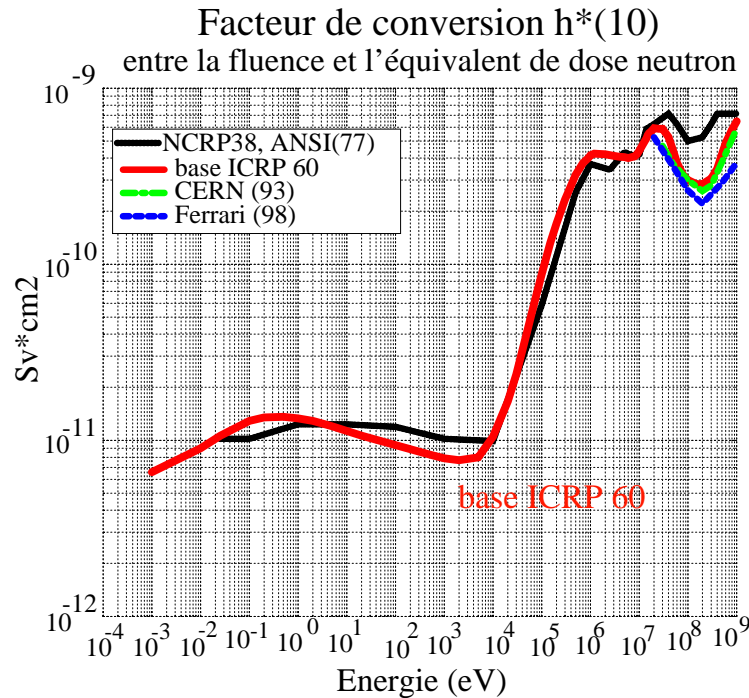


FIG. 2.21 – *Facteur de conversion $h^*(10)$.*

2.4.2 Caractérisation des flux à l'intérieur de l'enceinte

L'intensité du faisceau est de 2.48 mA, soit un courant de $1.55 \cdot 10^{16}$ p/s. Dans cette configuration, le flux moyen des neutrons intégré sur l'énergie dans le cœur est de $3.4 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s avec un flux maximum de $8.45 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s et un flux minimum de $8.28 \cdot 10^{13}$ n/cm²/s. De manière à

avoir une idée plus précise, nous avons défini une première cellule qui englobe l'ensemble des assemblages du cœur (assemblages combustibles) et une deuxième cellule qui contient la première et s'étend jusqu'à la surface intérieure de la cuve (assemblages combustibles et réflecteurs). La première cellule est appelée cellule cœur et la deuxième, cellule réflecteur. Dans ces deux cellules, nous avons simulé le flux de l'ensemble des neutrons ainsi que des neutrons de spallation en fonction de l'énergie. Les flux moyennés dans ces cellules sont représentés sur la figure 2.22.

Le flux des neutrons de spallation est plus faible d'un facteur 10 à 100 suivant l'énergie par rapport au flux moyen de l'ensemble des neutrons. Par ailleurs, le flux moyen dans la cellule réflecteur est atténué d'un facteur de l'ordre de 100 par rapport au flux moyen du cœur et son spectre en énergie est plus thermalisé.

L'évolution du flux en fonction de l'énergie au-dessus du cœur est donnée sur la figure 2.23. Cette figure permet de quantifier la divergence des neutrons au-dessus du cœur. Le rapport des fluences fait apparaître une atténuation du flux d'un facteur 10 entre une position proche du cœur (2,5 m au-dessus du centre du cœur) et une position en haut de la cuve (7.5 m au-dessus du centre du cœur).

2.4.3 Caractérisation des flux et débits de dose à l'extérieur de l'enceinte

Les flux de neutrons à l'extérieur de l'enceinte par décade d'énergie sur la surface latérale de l'enceinte sont donnés sur la figure 2.24.

Ils sont calculés dans les cellules positionnées à une distance radiale constante de 2.5 m et d'épaisseur 2 cm avec une hauteur de 50 cm. Les flux sont donc donnés en fonction de la hauteur de la cuve. L'origine est prise au centre de la source de spallation soit 26 cm en-dessous de la fenêtre. Ce point correspond au milieu du cœur (la partie combustible des assemblages est centrée par rapport à ce point). Il se détache deux groupes de neutrons :

- les neutrons créés par fission dans le cœur dont l'énergie est comprise entre quelques eV et quelques MeV,
- les neutrons créés par spallation dans la cible dont l'énergie est comprise entre quelques MeV et 1 GeV (énergie des protons incidents).

Les neutrons de fission sont majoritaires et présentent un flux maximum de l'ordre de quelques 10^{12} n/cm²/s au milieu du cœur. Les neutrons de spallation présentent un flux maximum décalé vers le bas par rapport au centre du cœur (dissymétrie avant - arrière) conséquence de la direction du faisceau de protons. Dans le détail, il apparaît d'après la figure 2.24, un flux maximum de l'ordre de 1.10^{12} n/cm²/s au milieu du cœur pour des neutrons entre 10 et 100 keV et de l'ordre de 8.10^{11} n/cm²/s pour des neutrons de 100 keV à 1 MeV. Ces neutrons majoritaires correspondent essentiellement aux neutrons créés par fission dans le combustible.

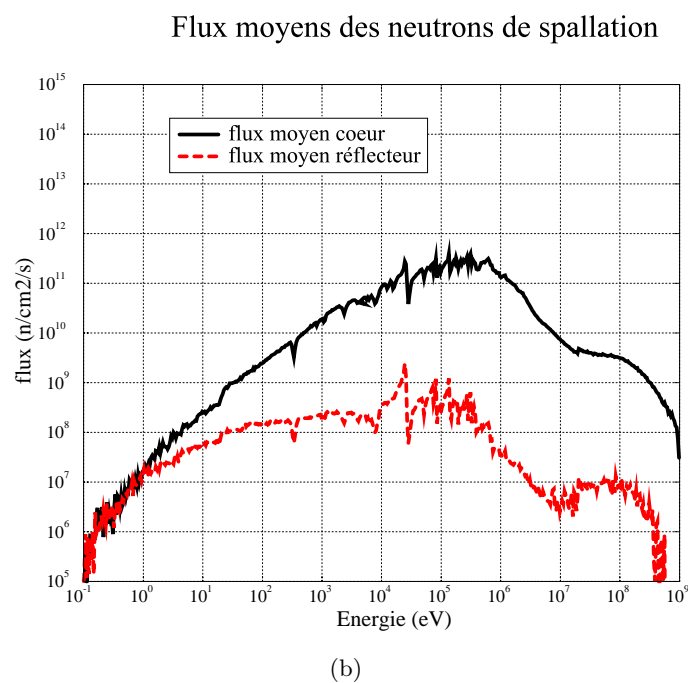
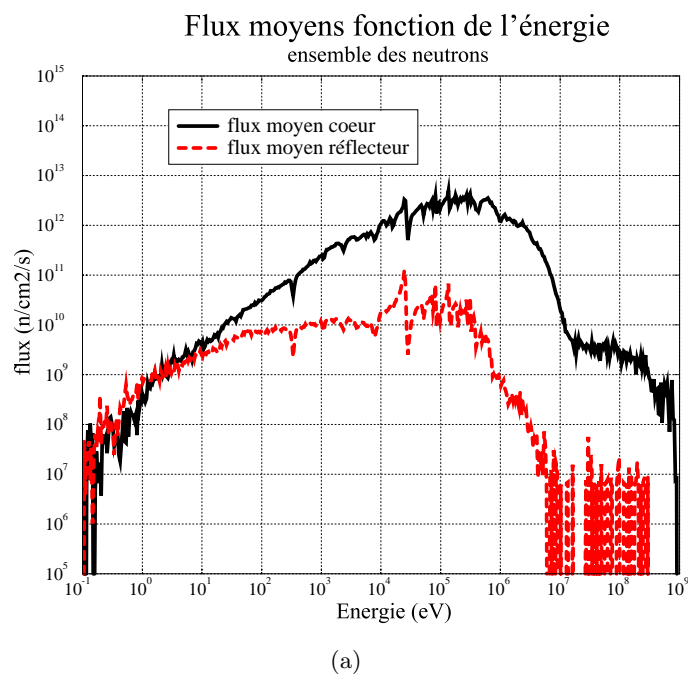


FIG. 2.22 – Flux moyens pour l'ensemble des neutrons (a) et pour les neutrons de spallation (b) dans la cellule cœur et dans la cellule réflecteur.

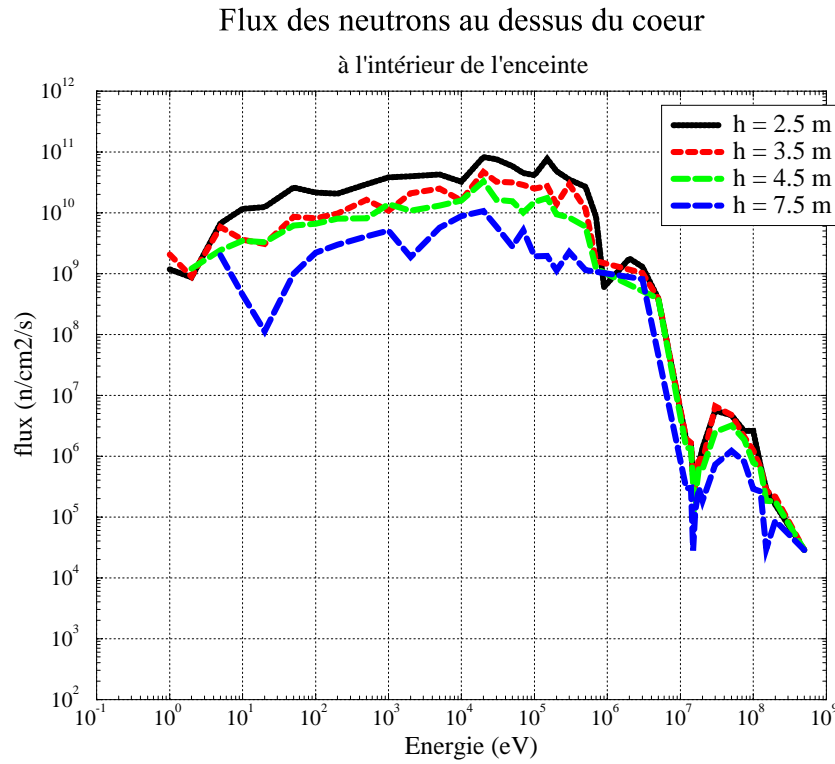


FIG. 2.23 – Evolution du flux au-dessus du cœur à l'intérieur de l'enceinte.

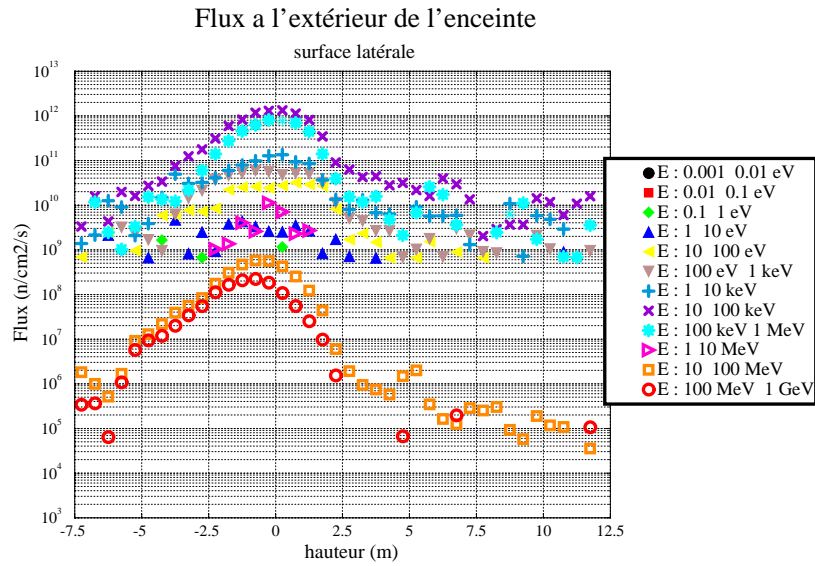


FIG. 2.24 – Flux à l'extérieur de l'enceinte par décade d'énergie.

Pour les neutrons de spallation, de 10 à 100 MeV et de 100 MeV à 1 GeV , les flux maxima sont respectivement de l'ordre de 5.10^8 et 1.10^8 , soit un facteur de réduction de 1000 par rapport aux neutrons de fission. Par ailleurs, la disymétrie avant - arrière est d'autant plus marquée que l'énergie des neutrons est élevée. Pour les neutrons entre 100 MeV et 1 GeV, le maximum est situé 1.5 m plus bas que le centre du cœur.

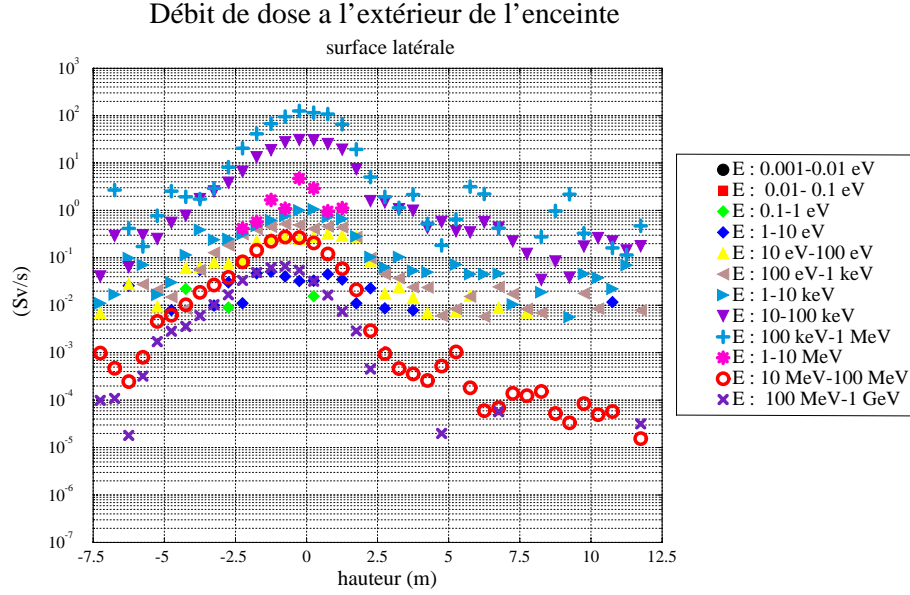


FIG. 2.25 – Débit de dose à l'extérieur de l'enceinte par décade d'énergie.

Le débit de dose calculé à l'aide des coefficients $h^*(10)$ (tableau C.1) est donné sur la figure 2.25. La dose maximum est apportée par les neutrons compris entre 10 keV et 1 MeV. Les neutrons les plus pénalisants en terme de débit de dose sont les neutrons entre 100 keV et 1 MeV à associer à une ionisation importante de la matière. Celle-ci est la conséquence de la création de protons de recul ([51] et [52]). En effet, dans la matière "équivalent au tissu humain", fortement hydrogénée, les protons de recul apparaissent pour des neutrons de quelques keV ce qui explique l'évolution rapide du facteur $h^*(10)$ autour du keV (figure 2.21). Par ailleurs, les neutrons d'énergies supérieures à 10 MeV ont une contribution, en terme de débit de dose, équivalente à celle des neutrons entre quelques eV à 1 keV, de l'ordre de 0.2 Sv/s.

2.5 Conclusions

Au cours de ce chapitre, nous avons caractérisé le bilan neutronique du démonstrateur proposé, à travers l'influence des dimensions du cœur, de la taille du réflecteur et de sa composition, des matériaux présents ainsi que du couplage source - cœur. Tout d'abord, il apparaît qu'une forme orthocylindrique optimise l'utilisation des neutrons source. De plus, un réflecteur à base de nickel présente des propriétés neutroniques plus intéressantes que l'acier de référence dont certains éléments capturent fortement. Enfin, une amélioration du couplage source - cœur a été envisagée sous deux aspects. D'une part, la réduction de la taille de la cible par l'utilisation d'une cible sans fenêtre a procuré un léger gain sur le couplage. Son influence sur la puissance du cœur et le facteur de forme sera analysée ultérieurement. D'autre part, la mise en place d'un amplificateur de source (booster), sous la forme d'un anneau entourant la cible, a été étudiée. Le couplage est alors notablement amélioré ce qui permet de réduire l'intensité du faisceau de protons à envisager pour un incinérateur industriel. Mais, il nous semble que cet ajout complique le système et la faisabilité de son intégration reste à prouver. Pour les deux solutions proposées, des études complémentaires, notamment thermohydrauliques, seront nécessaires pour explorer ces concepts plus en détail. En ce qui concerne les calculs de débits de dose, il apparaît que les neutrons de spallation ne représentent qu'une faible contribution au débit de dose total à la sortie de l'enceinte (de l'ordre du centième du débit de dose total) en comparaison des neutrons de fission. Par contre, il semble nécessaire d'interposer une épaisseur importante de matériau (béton ou autre) pour obtenir leur réduction. Enfin, la méthode de Monte Carlo qui permet de traiter la géométrie exacte peut être adaptée à ce type de problème à condition d'optimiser les techniques numériques.

Chapitre 3

Calculs d'évolution des combustibles du démonstrateur

Dans ce chapitre, nous allons évaluer et caractériser l'évolution de différents combustibles envisageables pour le démonstrateur. Dans un premier temps, nous avons commencé par le combustible de référence du démonstrateur pour la phase de qualification du concept “XADS” (eXperimental Accelerator Driven System), à savoir un combustible MOX (U/Pu). L'intérêt essentiel d'un système hybride est la possibilité de pouvoir charger le cœur avec des combustibles variés comprenant des pourcentages importants d'actinides mineurs qui dégradent les propriétés neutroniques du combustible. Cette dégradation provient des faibles proportions de neutrons retardés (β_{eff} inférieur à 300 pcm), et d'un effet Doppler limité par la suppression de la matrice fertile constituée par l' ^{238}U . Dans ce contexte, nous avons examiné plusieurs compositions avec différents pourcentages d'actinides mineurs sans matrice fertile dans un but d'incinération, de manière notamment à obtenir une réactivité stable. Par ailleurs, nous avons évalué les quantités d'actinides mineurs incinérées. Ces évolutions correspondent à la phase de démonstration de l'incinération au sein de l'XADT (eXperimental Accelerator Driven Transmuter). Plusieurs scénarios sont actuellement envisagés. Ces scénarios, à moyen terme, sont basés sur des parcs électro-nucléaires désignés sous les termes de parcs à “double strate” ou à “double composante” définis dans la référence [19] et rappelés au chapitre 1. Ces parcs reposent sur des réacteurs à eau pressurisée de type REP auxquels s'ajoutent une proportion de réacteurs à neutrons rapides et/ou de réacteurs dédiés à l'incinération/transmutation. Dans le cadre du démonstrateur, l'intégration d'un combustible à base d'actinides mineurs, dépendra du développement d'une unité de séparation poussée. On a supposé que les actinides sont issus dans un premier temps d'un combustible entreposé pour profiter de la décroissance α du ^{244}Cm . Un développement important devra être accompli au niveau des combustibles pour répondre aux exigences précédentes. Enfin, nous avons envisagé un combustible à base de thorium/plutonium dans des perspec-

tives de développement à plus long terme de filières moins génératrices d'actinides mineurs. Le démonstrateur doit être conçu comme un outil de test et de validation de combustibles à base d'actinides mineurs. Nous avons déterminé l'évolution temporelle de ces différents combustibles ainsi que leur influence sur les facteurs de multiplication. Ces calculs d'évolution du combustible ont été réalisés à l'aide du code REM (Règles pour l'Evolution avec MCNP), développé au sein du groupe dont une présentation est donnée en annexe A, couplé avec le code de calcul MCNPX.

Avant d'aborder en détail les calculs d'évolution, il est nécessaire de définir des variables de comparaison pour de meilleures interprétations des résultats. Les variables utilisées pour caractériser l'efficacité de l'incinération des actinides mineurs et de la transmutation des produits de fission sont les suivantes :

- la consommation relative (%) pendant une durée fixée :

$$\frac{\text{masse initiale} - \text{masse finale}}{\text{masse initiale}}$$

- le taux de fission (%) :

$$\frac{\text{masse fissionnée}}{\text{masse initiale}}$$

- la consommation spécifique¹ (kg/TWhé²) :

$$\frac{\text{masse initiale} - \text{masse finale}}{\text{énergie produite}^3}$$

D'autre part, nous définissons les noyaux lourds (NL) comme l'ensemble des noyaux de numéro atomique supérieur ou égal à 90 (thorium). Les transuraniens (TRU) représentent les noyaux de numéro atomique supérieur à 92 (au delà de l'uranium) et les actinides mineurs (AM) correspondent aux noyaux de neptunium, d'américium, de curium et des éléments suivants.

3.1 Chargement en combustible d'oxyde d'uranium et de plutonium (MOX (U/Pu))

Dans un premier temps, nous allons caractériser le comportement du démonstrateur chargé avec le combustible MOX (U/Pu) de référence puis l'effet Doppler associé à ce type de combustible. L'évolution d'un combustible MOX (U/Pu) correspond au chargement de la première phase de démonstration définie au paragraphe 1.3.4.

3.1.1 Evolution de la réactivité

Rappel de la configuration étudiée

Le démonstrateur est constitué de la cible de référence en plomb-bismuth autour de laquelle s'ajoute un cœur formé de 90 assemblages hexagonaux. Le volume du cœur est de 3.4 m³ ce

1. La production est donc négative et la consommation positive.

2. kg/TWhé : kilogramme par TéraWatt.heure électrique.

qui correspond à une masse de 7.4 tonnes de combustible et sa puissance est fixée à 100 MW thermiques soit une puissance linéique moyenne de 176 W/cm. Le réflecteur a une épaisseur de un mètre et est formé d'assemblages hexagonaux avec des crayons en nickel. La puissance du cœur est maintenue constante et est pilotée par l'accélérateur dont la variation de l'intensité compense les variations de réactivité. Le combustible est composé de MOX (U/Pu) enrichi à 24.1 % en plutonium dont la composition isotopique est donnée dans le tableau 1.3. Cette concentration étant supérieure à la concentration d'équilibre (de l'ordre de 12 %), on peut en déduire la tendance de l'évolution du combustible, à savoir une consommation du plutonium et une perte de réactivité. Les sections efficaces ont été reconstruites à l'aide du programme NJOY [58] [59] pour tenir compte d'une température du combustible de 900 K.

Evolution de la réactivité

Un des points importants à déterminer est l'évolution du facteur de multiplication k_{eff} puisqu'il détermine l'intensité du faisceau nécessaire au maintien de la puissance thermique à un niveau constant. L'évolution de k_{eff} est donnée sur la figure 3.1.

L'évolution sans rechargement sur trois ans du combustible MOX (U/Pu) fait apparaître une décroissance de la réactivité de l'ordre de 4000 pcm pour un k_{eff} initial de 0.96. Pour maintenir la puissance constante, l'intensité du faisceau de protons croît dans des proportions importantes comme l'indique la figure 3.1 pour atteindre près de 6 mA pour un k_{eff} de 0.915 au bout de ces trois ans. On voit, dans le cas où le pilotage serait réalisé par le faisceau, les écarts d'intensité à prévoir sur un cycle. D'autres moyens de contrôle de la réactivité sont évidemment possibles. Il peut s'agir de poisons consommables ou de barres de contrôle. Mais ces systèmes présentent l'inconvénient de réduire les neutrons disponibles en vue de l'incinération ou de la transmutation. On comprend donc l'intérêt d'un combustible proche d'une concentration d'équilibre qui assurerait une réactivité stable et notamment dans le cas d'un réacteur incinérateur de puissance.

Un point également intéressant est l'évolution du spectre énergétique des neutrons au cours de l'évolution (figure 3.2). La forme du spectre est relativement bien conservée au cours du temps et notamment son caractère de spectre rapide.

Evolution des compositions

Les variables globales de l'évolution sont les masses de transuraniens (TRU), d'actinides mineurs (AM), de noyaux lourds (NL) et de produits de fission (PF). Les noyaux lourds comprennent l'ensemble des éléments à partir du thorium, les transuraniens l'ensemble des éléments au-delà de l'uranium et les actinides mineurs les éléments au delà du plutonium par opposition avec l'uranium et le plutonium désignés sous le terme d'actinides majeurs. Leur évolution est donnée sur la figure 3.3.

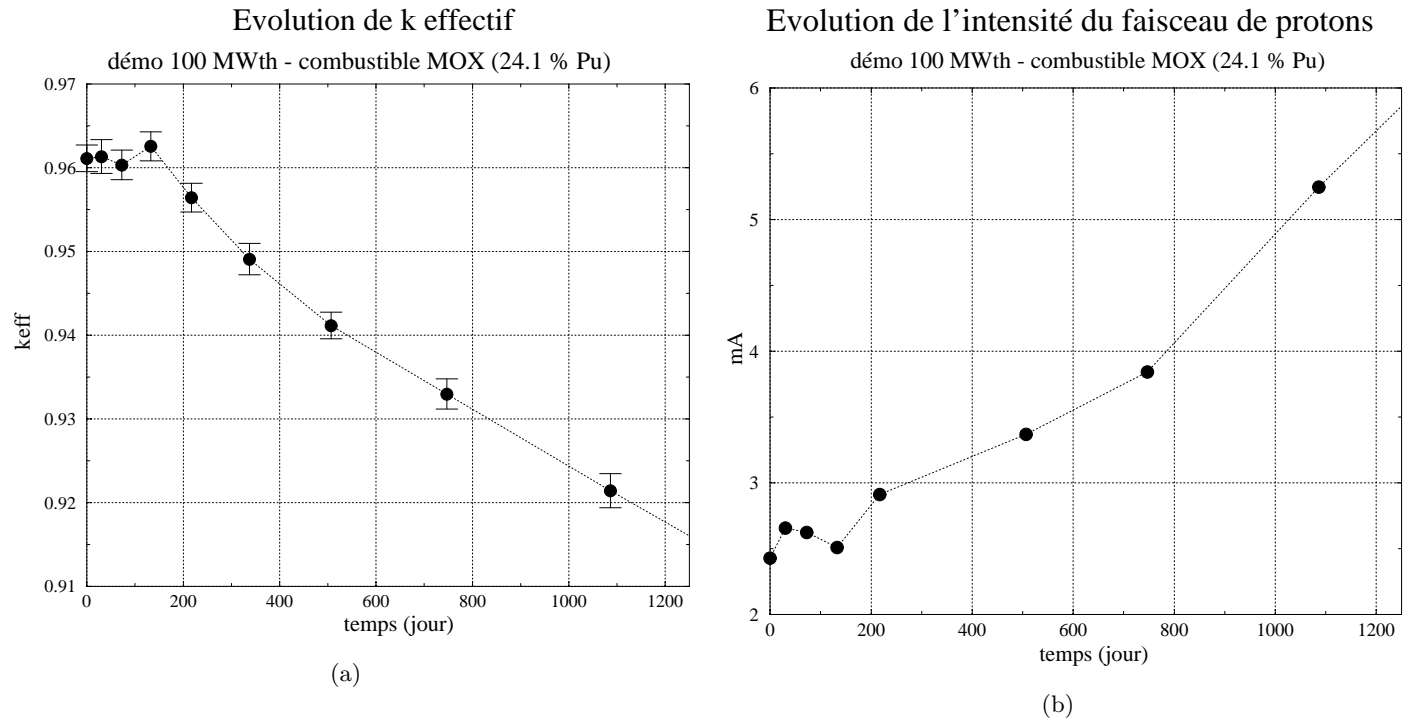


FIG. 3.1 – Evolution du k_{eff} (a) et de l'intensité du faisceau de protons (b) sur trois ans.

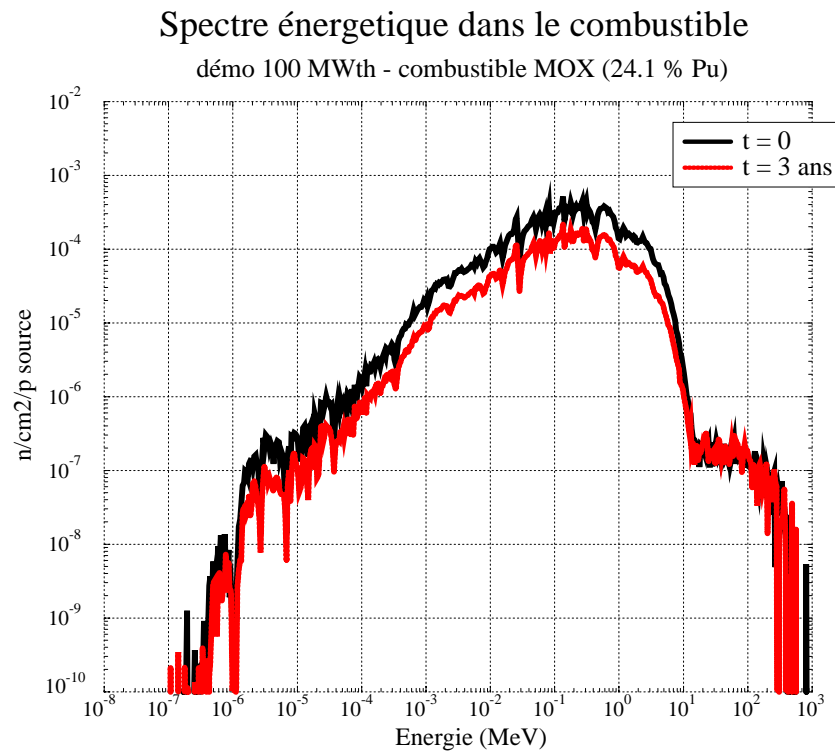


FIG. 3.2 – Evolution du spectre énergétique des neutrons dans le combustible MOX (U/Pu).

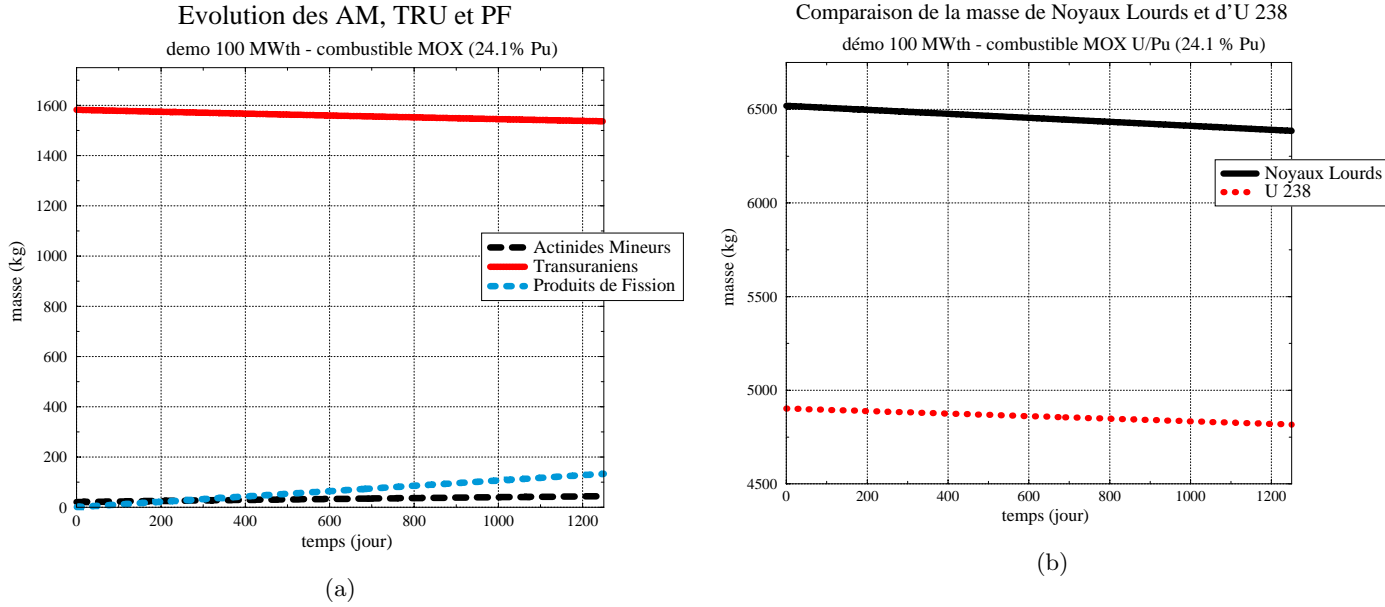


FIG. 3.3 – Evolution des compositions des Transuraniens (TRU), des Actinides Mineurs (AM) et des Produits de fission (PF) (a) des Noyaux Lourds (NL) et de $l^{238}\text{U}$ (b) dans le cas d'un combustible MOX (U/Pu) enrichi avec 24.1 % de plutonium.

Sur la figure 3.3, il apparaît une diminution de l'inventaire en transuraniens de 40.4 kg en trois ans pour une puissance de 100 MWth ce qui correspond à une consommation spécifique de 46 kg/TWhé. Par contre, on remarque une augmentation de la masse d'actinides mineurs de 20.9 kg en trois ans pour 100 MWth ce qui correspond à une production spécifique de 23.9 kg/TWhé. De ces constatations, on peut déduire que l'élément consommé est essentiellement du plutonium régénéré par l' $l^{238}\text{U}$ mais associé à une production d'actinides mineurs par réactions (n, γ) successives à partir de l' $l^{238}\text{U}$ et des noyaux fertiles du plutonium. La consommation d' $l^{238}\text{U}$ (figure 3.3) est de 74.6 kg pour une puissance 100 MWth en trois ans ce qui correspond à une consommation spécifique de 85 kg/TWhé. Les évolutions des compositions détaillées confirment ce comportement bien connu d'un combustible MOX (U/Pu).

La consommation globale de plutonium est de 62.3 kg pour 100 MWth en trois ans avec principalement une consommation de ^{239}Pu et de ^{241}Pu comme le montrent le tableau 3.1 et la figure 3.4.

Ces consommations sont directement liées au rapport des sections efficaces moyennes de fission et de capture qui restent relativement constantes au cours de l'évolution. Le tableau 3.2 donne les valeurs initiales et après 3 ans d'irradiation de ces sections efficaces pour les isotopes du plutonium ainsi que de leur rapport donné par le coefficient $\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$. Un point important est l'évolution de la section efficace moyenne de capture des produits de fission. Cette section

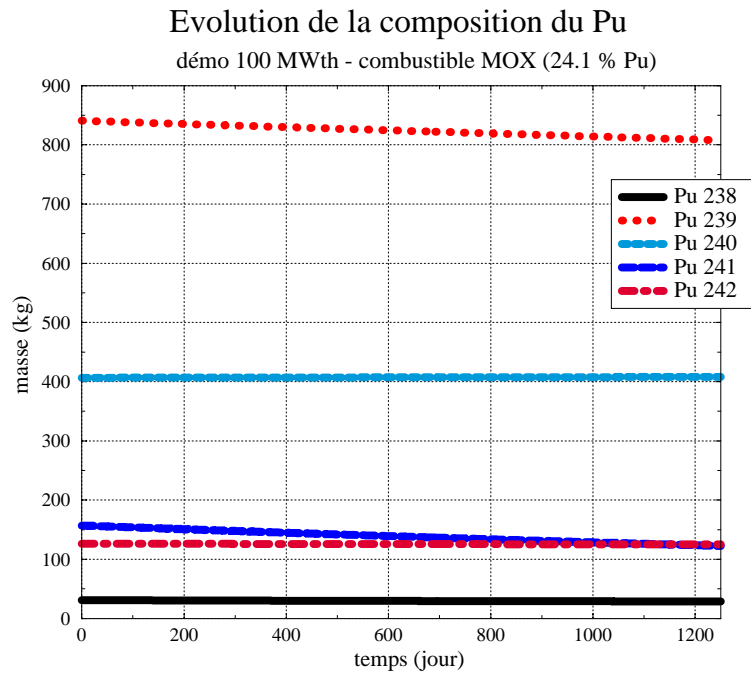


FIG. 3.4 – Evolution du vecteur isotopique du Pu pour un combustible MOX (U/Pu) enrichi   24.1 % de plutonium.

Isotope	Consommation sp�cifique (kg/TWh�)
^{238}Pu	2.4
^{239}Pu	33.7
^{240}Pu	-1.4
^{241}Pu	35.1
^{242}Pu	1.3
Total	71.

TAB. 3.1 – Consommation sp cifique du Pu pour un combustible MOX (U/Pu) enrichi   24.1 % de plutonium pour une  volution de 3 ans.

efficace reste constante au cours du temps et est de l'ordre de 0.25 barn comme le confirme la figure 3.5.

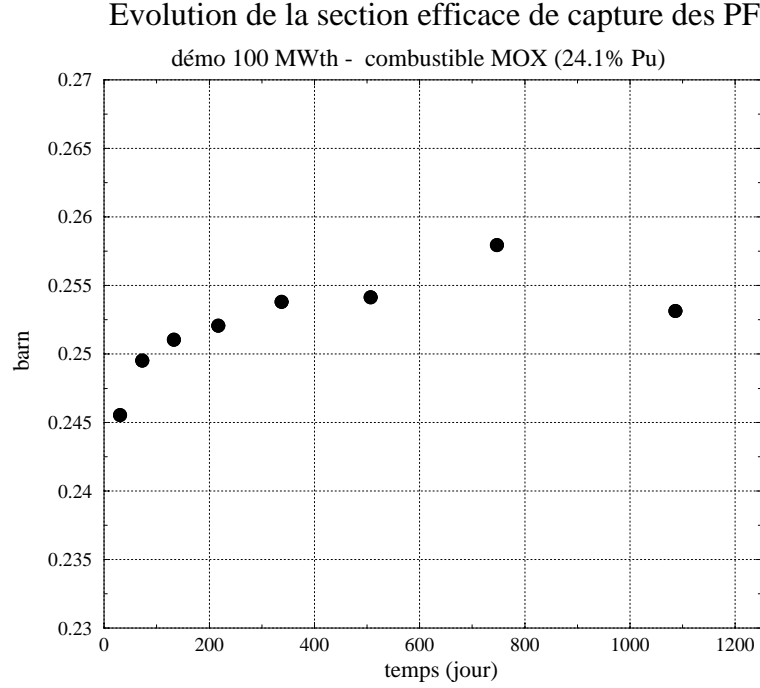


FIG. 3.5 – Evolution de la section efficace moyenne de capture des produits de fission (PF).

	� t = 0			� t = 3 ans		
Isotope	σ_f	σ_c	α	σ_f	σ_c	α
^{238}Pu	1.173	0.737	0.628	1.162	0.736	0.634
^{239}Pu	1.820	0.477	0.262	1.817	0.482	0.265
^{240}Pu	0.429	0.490	1.142	0.414	0.493	1.192
^{241}Pu	2.520	0.436	0.173	2.534	0.441	0.174
^{242}Pu	0.301	0.436	1.449	0.292	0.444	1.519

TAB. 3.2 – Sections efficaces moyennes de fission et de capture et rapport $\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$ des sections efficaces moyennes   l'instant initial et apr s trois ans d'irradiation du vecteur isotopique du plutonium.

La derni re cons quence li e   l' volution du combustible MOX (U/Pu) est la cr ation d'actinides mineurs au cours de l'irradiation et notamment d'am ricium et de curium comme le montre l' volution des compositions pour ces  l ments (voir figure 3.6).

Il s'agit essentiellement de l' ^{241}Am qui est produit   raison de 20 kg/TWh . Cet ^{241}Am provient de la d croissance β^- du ^{241}Pu de p riode 14.35 ans. On trouve ensuite de l' ^{243}Am qui est produit   raison de 2.95 kg/TWh  et qui provient principalement de r action (n, γ) sur le

^{242}Pu suivi de la décroissance β^- de période 5 heures du ^{243}Pu . Enfin, il y a création de ^{237}Np et de ^{242}Cm en faibles quantités.

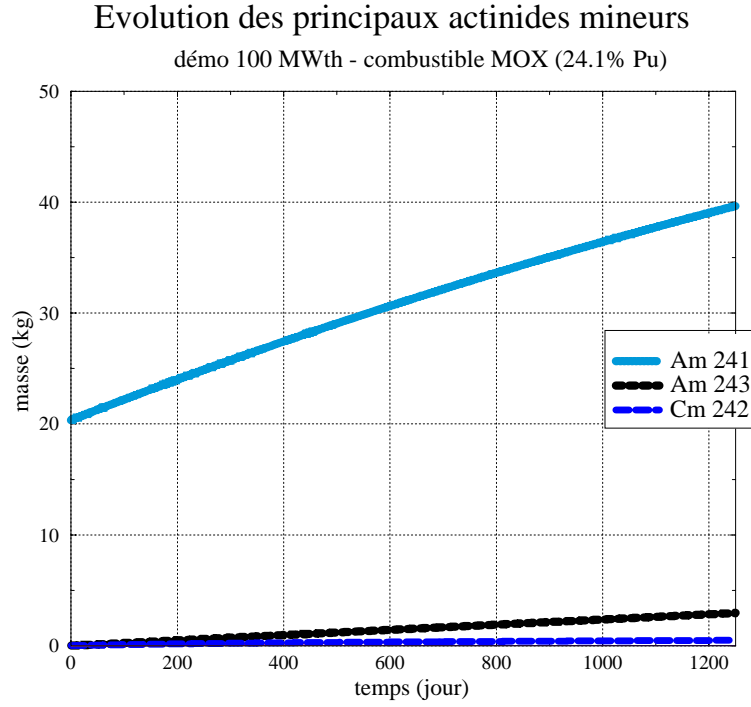


FIG. 3.6 – *Evolution des compositions des principaux actinides mineurs du combustible MOX (U/Pu) enrichi   24.1 % de plutonium.*

En r sum , on retrouve le comportement bien connu du combustible MOX (U/Pu),   savoir une consommation des noyaux fissiles du plutonium, ^{239}Pu et ^{241}Pu avec une d gradation du caract re fissile du plutonium et l'accumulation d'actinides mineurs qui rend le multirecyclage du MOX (U/Pu) probl matique apr s quelques cycles.

3.1.2 Influence de la température du combustible : Effet Doppler

Rappels sur les coefficients de réactivité

D'après la référence [60], la définition donnée pour un coefficient de réactivité est la suivante : Si pour une raison physique quelconque le facteur de multiplication k_{eff} du réacteur varie quand un paramètre p caractérisant l'état de ce réacteur varie, l'effet sera évalué par la dérivée de k_{eff} par rapport à p . L'habitude veut que l'on choisisse la dérivée logarithmique de k_{eff} , c'est à dire que l'on définisse les coefficients de réactivité par :

$$\alpha = \frac{1}{k_{eff}} \frac{\partial k_{eff}}{\partial p} \quad (3.1)$$

On considère :

- le coefficient de réactivité de température du combustible (effet Doppler) avec p identifié à la température du combustible,
- le coefficient de réactivité de température du modérateur et/ou du caloporteur avec p identifié à la température du modérateur et/ou du caloporteur,
- le coefficient de réactivité de vide du modérateur et/ou du caloporteur avec p identifié au coefficient de vide du modérateur et/ou du caloporteur.

Pour assurer la sûreté du réacteur la combinaison de ces coefficients de réactivité doit être négative et dans ce cas, on parle de coefficients de contre-réaction. Supposons, par exemple, que se produise une augmentation de puissance induisant une augmentation de température. Si le coefficient de température est négatif, il va en résulter une baisse de la réactivité et de la puissance. On constate ainsi que cette réaction s'oppose à la perturbation initiale. Pour un réacteur rapide refroidi à l'hélium, seul le coefficient de réactivité lié à la température du combustible est présent. Dans le cas d'un réacteur rapide refroidi au plomb ou au plomb-bismuth, le coefficient de réactivité de vide du caloporteur est généralement négatif pour des cœur suffisamment compacts ce qui est particulièrement important pour la sûreté, notamment lorsque le coefficient de réactivité de température du combustible est faible. Par contre, dans le cas d'un réacteur rapide refroidi au sodium, on a constaté dans le cas de Superphénix, un effet de vide positif dans les parties centrales du cœur et négatif dans les parties périphériques du cœur. Dans notre cas, nous allons nous intéresser uniquement au coefficient de réactivité de température du combustible (effet Doppler).

Coefficients de réactivité de température du combustible MOX (U/Pu)

L'effet Doppler provoque l'élargissement des résonances des sections efficaces suite à l'agitation thermique des noyaux ce qui a pour conséquence d'augmenter les taux de capture par

réduction de l'auto-absorption. Dans le cas des réacteurs rapides, l'effet Doppler, est moins important que pour les réacteurs à neutrons thermiques, puisque une proportion plus faible de neutrons atteint le domaine des résonances. On trouve une valeur d'environ $-1 \text{ pcm}/^\circ\text{K}$ pour le combustible MOX (U/Pu) enrichi à 24.1 % de plutonium. L'effet négatif est lié à la présence d' ^{238}U dont la section efficace de capture augmente avec l'augmentation de température comme le montre la figure 3.7.

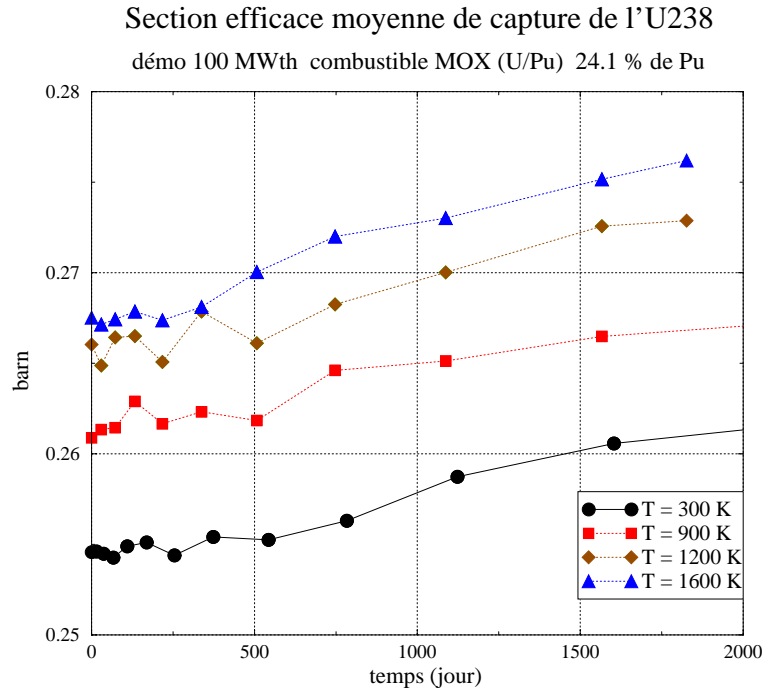


FIG. 3.7 – Influence de la température sur la section efficace moyenne de capture de l' ^{238}U au cours de l'évolution pour des températures de combustible de 300, 900, 1200 et 1600 K.

Dans le cas d'un combustible sans matrice fertile (sans ^{238}U par exemple) à base d'actinides mineurs, l'effet Doppler pourrait engendrer un coefficient de température positif ce qui justifie pleinement la nécessité de la sous-criticité pour envisager la mise en place de tels combustibles. **Du point de vue de la sûreté, il demeure que l'on devra s'attacher à obtenir une configuration de cœur stable même avec un cœur largement sous-critique.**

3.2 Chargement en combustible oxyde à base d'Actinides Mineurs

3.2.1 Préambule

Pour le démonstrateur, le chargement avec un combustible à base d'actinides mineurs est dépendant de la mise en place d'une unité de séparation poussée des actinides mineurs. Les actinides mineurs conditionnés dans des verres semblent difficilement utilisables dans l'état actuel des connaissances. Une quantité importante est contenue dans les combustibles stockés actuellement à savoir environ 10000 tonnes de combustible UOX et 1000 tonnes de combustible MOX (U/Pu). Dans ces conditions, nous pouvons raisonnablement considérer que le premier chargement avec un combustible à base d'actinides mineurs serait issu d'un combustible UOX ou MOX actuellement stocké. Dans ce cas, la phase de retraitement - séparation de ce combustible aura lieu après une période de refroidissement importante.

Combustible à base d'actinides mineurs purs

Le démonstrateur est dans la même configuration que précédemment avec la cible de référence et 90 assemblages de combustible qui contiennent une masse de combustible de 7.86 tonnes sous forme d'oxydes. Dans un premier temps, nous avons considéré un combustible à base d'actinides mineurs dont la composition est donnée dans le tableau 3.3 pour caractériser l'évolution des actinides mineurs et leur influence sur la réactivité. Ce combustible est essentiellement formé d'éléments fertiles et sa composition globale par élément est la suivante :

- 0.17 % d'uranium,
- 2.48 % de neptunium,
- 10.80 % de plutonium formé essentiellement de ^{240}Pu issu de la décroissance α du ^{244}Cm ,
- 80.65 % d'américium,
- et 5.89 % de curium.

Il est utile de rappeler ici, que l'américium domine la radiotoxicité intrinsèque des déchets (actinides mineurs et produits de fission issus du retraitement du combustible UOX) entre une centaine d'années et 100000 ans. Au cours de la première centaine d'années, la radiotoxicité intrinsèque des déchets est principalement due aux produits de fission.

Evolution de la réactivité

La composition du combustible est dominée par les isotopes fertiles de l'américium et par conséquent le k effectif va augmenter au cours du temps comme le montre la figure 3.8. Sa valeur initiale est fixée à 0.925 pour pallier l'augmentation de réactivité. La valeur de 0.95 est atteinte après une période relativement longue de 6 ans sans rechargement. Du point de vue de

Isotope	A t = 4 ans (%)	Au chargement (36 ans) (%)
^{234}U	-	0.13
^{236}U	-	0.04
^{237}Np	-	2.48
^{238}Pu	-	0.43
^{239}Pu	-	0.21
^{240}Pu	-	10.16
^{241}Am	51.35	48.87
^{242}Am	0.60	-
^{243}Am	31.88	31.78
^{243}Cm	0.24	0.12
^{244}Cm	14.16	4.00
^{245}Cm	1.77	1.77

TAB. 3.3 – Composition isotopique du combustible à base d’actinides mineurs (AM) 4 ans après le déchargement et au moment de son chargement après 30 ans de refroidissement en piscine (retraitement à 4 ans d’un combustible MOX (U/Pu) d’un REP 900 MWé à un taux de combustion de 43.5 GWj/t).

la sûreté, cette augmentation de réactivité n’est pas souhaitable. Nous allons donc rechercher une composition de combustible dont la réactivité au cours du temps reste stable par l’ajout de plutonium et d’une matrice inerte pour limiter la puissance au sein des crayons.

Evolution des compositions

Le comportement de ce combustible à base d’actinides mineurs est radicalement différent d’un combustible MOX (U/Pu). Outre l’augmentation de la réactivité au cours du temps, les compositions globales évoluent également différemment. Dans le cas d’un combustible à base d’actinides mineurs, contrairement à un combustible MOX (U/Pu), on constate une production de Pu et notamment de ^{238}Pu et une consommation importante d’actinides mineurs et notamment les ^{241}Am et ^{243}Am . Cette tendance est visible sur la figure 3.9 qui donne l’évolution des variables globales que sont les masses de transuranien (TRU), de noyaux lourds (NL) et d’actinides mineurs (AM).

Les processus qui déterminent cette évolution du combustible sont dus aux quantités importantes d’ ^{241}Am et d’ ^{243}Am présentes dans le combustible. On observe notamment la production

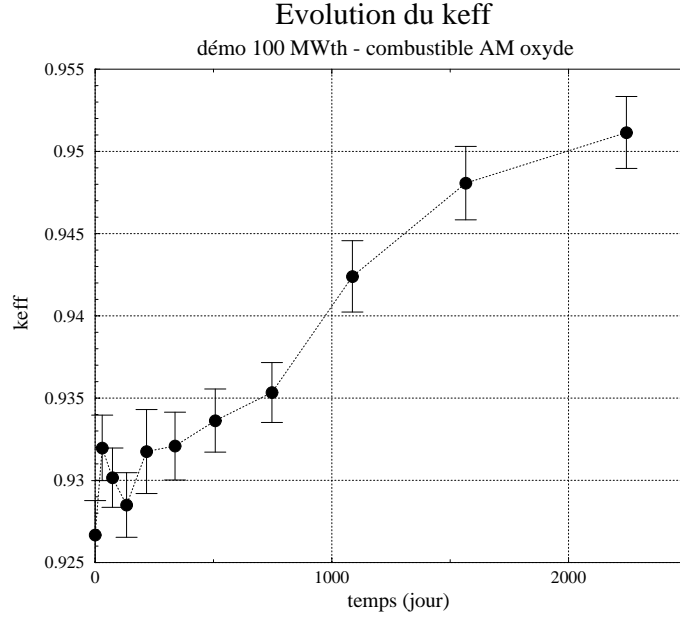
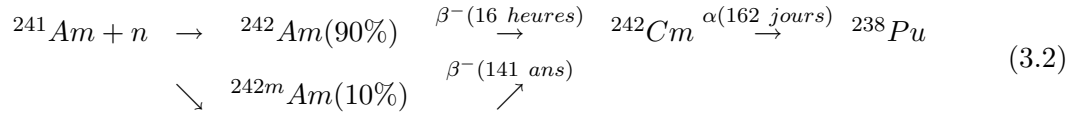


FIG. 3.8 – Evolution du k_{eff} d'un combustible oxyde à base d'actinides mineurs sur 6 ans.

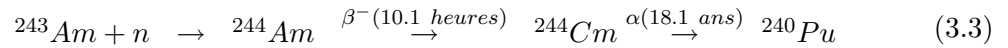
de ^{238}Pu à partir de l' ^{241}Am selon le processus suivant :

- ^{241}Am



A noter également la production du ^{240}Pu par décroissance α du ^{244}Cm issu de l' ^{243}Am selon le processus suivant :

- ^{243}Am



Cette augmentation de la proportion de ^{238}Pu et également dans une moindre mesure du ^{240}Pu est montrée sur la figure 3.10.

Les consommations ou les productions spécifiques du plutonium (^{238}Pu et ^{240}Pu) et de l'américium (^{241}Am et ^{243}Am) sont données dans le tableau 3.4. Pour le curium, le bilan est relativement neutre malgré une production de ^{244}Cm par réaction (n, γ) sur l' ^{243}Am . Cette quantité de ^{244}Cm peut être stabilisée par un temps de refroidissement suffisamment long entre les différents recyclages pour bénéficier de sa courte période. L'évolution des principaux isotopes du curium est donnée sur la figure 3.11.

Ces consommations spécifiques (tableau 3.4) sont à mettre en relation avec les sections efficaces moyennes qui demeurent pratiquement constantes au cours de l'évolution. Le tableau 3.5 donne les sections efficaces moyennes initiales ainsi que leur rapport.

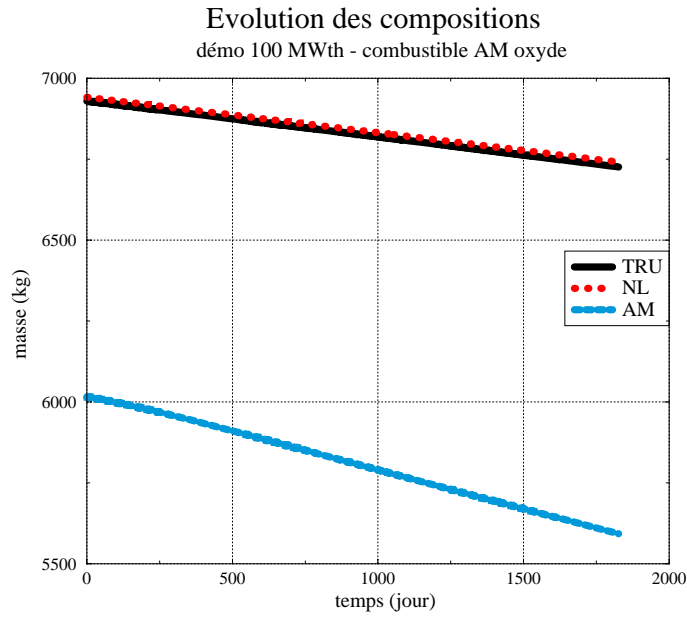
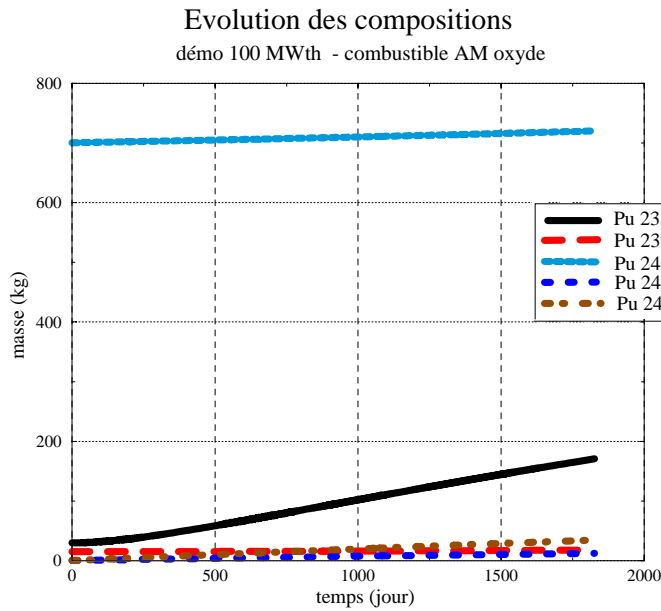
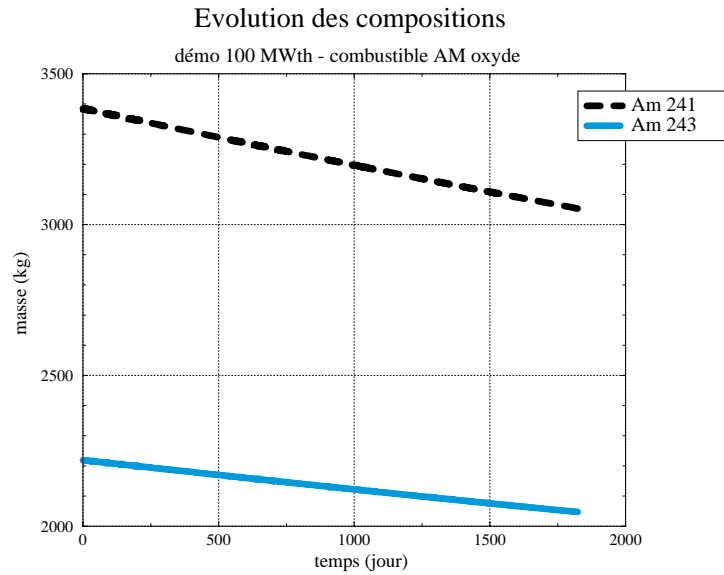


FIG. 3.9 – Evolution des masses de noyaux lourds (NL), de transuraniens (TRU) et d’actinides mineurs (AM).



(a)



(b)

FIG. 3.10 – Evolution des compositions du plutonium (a) et de l’am ricium (b).

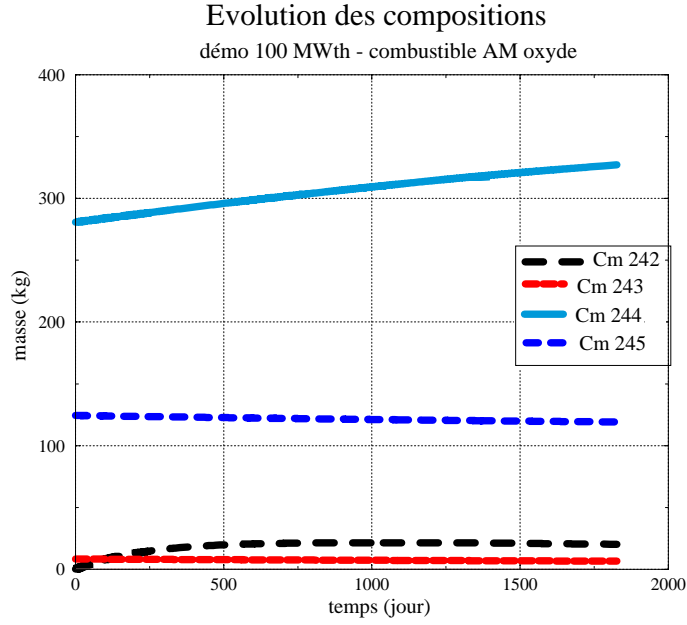


FIG. 3.11 – *Evolution des isotopes du curium.*

Isotope	Consommation sp�cifique (kg/TWh�)
^{238}Pu	-96.5
^{240}Pu	-13.5
^{241}Am	227.1
^{243}Am	117.6
^{244}Cm	-31.7

TAB. 3.4 – *Consommation sp cifique des principaux constituants du plutonium, et des actinides mineurs.*

Isotope	σ_c (barn)	σ_f (barn)	$\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$
^{238}Pu	0.482	1.190	0.504
^{240}Pu	0.314	0.499	0.629
^{241}Am	1.056	0.398	2.652
^{243}Am	0.905	0.316	2.865
^{244}Cm	0.549	0.572	0.959

TAB. 3.5 – *Sections efficaces moyennes initiales ainsi que leur rapport pour les principaux constituants du plutonium, et des actinides mineurs.*

Il apparaît donc qu'un apport de plutonium allié à une dilution des actinides mineurs et du plutonium dans de l'acier ou du zircaloy pour conserver un volume de cœur constant soit nécessaire si l'on souhaite avoir un k_{eff} constant ou légèrement décroissant au cours du temps. Ce dernier point peut en effet être déterminant pour la sûreté.

3.2.2 Recherche d'une réactivité stable

Nous avons envisagé deux types de combustible à base d'actinides mineurs dont la différence essentielle provient de la qualité du plutonium ajouté pour obtenir une réactivité stable.

1. un combustible oxyde formé d'actinides mineurs issu d'une séparation poussée après 33 ans de refroidissement d'un combustible UOX (REP 900 MWé à 33 GWj/t) dont la composition est constituée à 67 % d'actinides mineurs, à 16 % de plutonium "veilli" et à 17 % de zirconium naturel,
2. un combustible oxyde formé à base d'actinides mineurs dont la composition est constituée à 67 % d'actinides mineurs refroidi 30 ans après leur séparation d'un combustible MOX (U/Pu) (REP 900 MWé à 43.5 GWj/t) refroidi 4 ans, à 15 % de plutonium dont le vecteur isotopique est celui de notre combustible MOX (U/Pu) mais sans l'uranium et à 18 % de zirconium naturel.

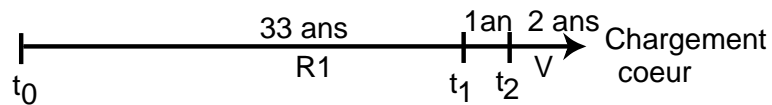
Ces combustibles sont présentés sur le schéma 3.12. Par ailleurs, l'introduction de zirconium, dans le rôle de matrice inerte, permet de limiter la puissance volumique au sein du combustible. L'introduction de plutonium permet de compenser l'augmentation de la réactivité induite par l'évolution des actinides mineurs et notamment par la création de ^{238}Pu via le processus donné par l'équation 3.2. La comparaison de l'évolution de la réactivité a été effectuée pour les deux combustibles oxydes suivants :

Les vecteurs isotopiques correspondants sont donnés dans le tableau 3.6.

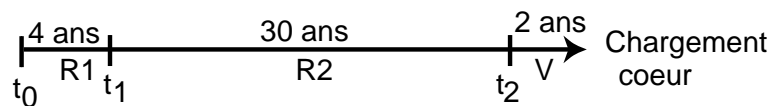
La figure 3.13 montre l'évolution du k_{eff} sur une période de 5 ans pour ces deux combustibles envisagés comparé avec l'évolution d'un combustible MOX (U/Pu) de référence enrichi à 24.1% de plutonium.

Il apparaît, pour les combustibles à base d'actinides mineurs, avec l'ajout de plutonium, une réactivité stable sur 5 ans. La présence d'une quantité importante de noyaux fertiles au sein des actinides mineurs (^{241}Am et ^{243}Am) permet d'obtenir une réactivité stable ce qui n'était pas le cas avec un combustible MOX (U/Pu) pour le démonstrateur. Pour ces combustibles, au-delà de la réactivité, il est intéressant de voir l'évolution en détail des compositions et notamment de l'américium et du plutonium, éléments majoritaires de la composition donnée dans le tableau 3.6. L'inventaire global en actinides mineurs et transuraniens décroît au cours du temps comme le confirme la figure 3.14. La différence entre les deux combustibles provient essentiellement de l'instant du retraitement dont la conséquence est la différence de qualité du plutonium avec la

Combustible 1: Issu d'un combustible UOX d'un REP 900 MWé à un taux de combustion de 33. GWj/t



Combustible 2: Issu d'un combustible MOX (U/Pu) d'un REP 900 MWé à un taux de combustion de 43.5 GWj/t



Notations

t_0 : déchargement REP

t_1 : retraitement - séparation des actinides mineurs et des produits de fission

t_2 : fabrication du combustible

R1 : refroidissement du combustible

R2 : refroidissement des actinides mineurs

V : vieillissement

FIG. 3.12 – Schéma du cycle des combustibles à base d'actinides mineurs envisagés pour le démonstrateur.

Isotope	Combustible 1 (% atomique)	Combustible 2 (% atomique)
^{234}U	-	0.10
^{236}U	-	0.04
^{237}Np	-	2.10
^{238}Pu	0.22	0.65
^{239}Pu	10.46	8.17
^{240}Pu	4.02	12.50
^{241}Pu	0.38	1.46
^{242}Pu	0.88	1.17
^{241}Am	76.44	41.80
^{243}Am	7.0	27.00
^{243}Cm	-	0.11
^{244}Cm	0.42	3.40
^{245}Cm	0.18	1.50

TAB. 3.6 – Vecteur isotopique des combustibles 1 et 2.

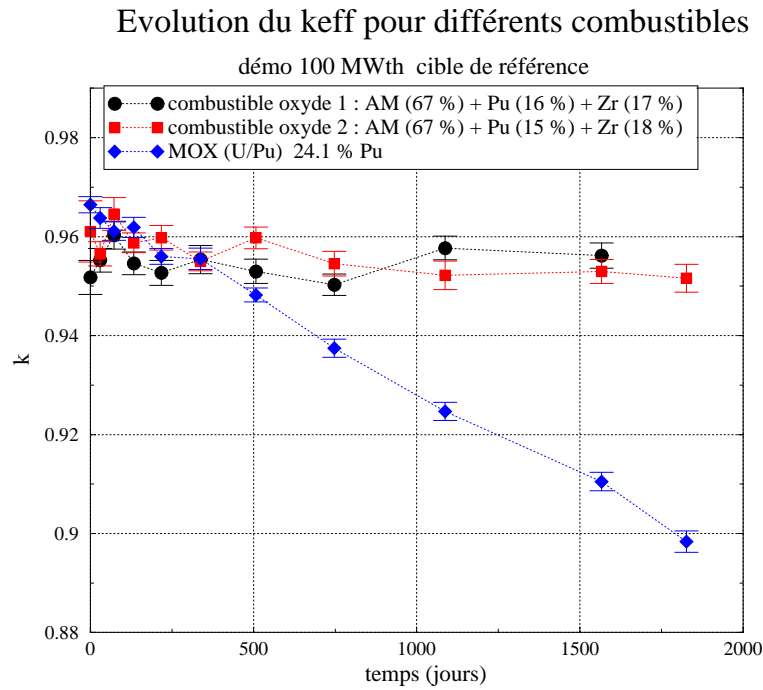


FIG. 3.13 – Comparaison de l volution du k_{eff} pour les deux combustibles   base d actinides mineurs envisag s et pour le combustible MOX (U/Pu) de r f rence.

présence importante de ^{240}Pu dans le combustible 2 provenant de la décroissance du ^{244}Cm . Mais la part du plutonium est équivalente dans les deux combustibles (de l'ordre de 15 %) pour maintenir la réactivité stable. Dans la composition des actinides mineurs, la part de l'américium représente plus de 80 % pour le combustible 1 contre un peu moins de 70 % pour le combustible 2 et la part du curium 0.6 % pour le combustible 1 contre 5 % pour le combustible 2. Cette différence est liée au type de combustible de départ (UOX et MOX) et au taux de combustion.

Le maintien de la réactivité est assuré par la combinaison de la consommation des ^{239}Pu et ^{241}Pu et la création de ^{238}Pu comme le confirme l'évolution des compositions des isotopes du plutonium donnée sur la figure 3.15.

L'évolution de l'américium est semblable pour les deux compositions comme le confirme la figure 3.16 bien que la quantité d' ^{241}Am dans le combustible 1 soit près du double de celle du combustible 2.

Pour le curium, les quantités présentes dans le combustible, données sur la figure 3.17, sont nettement plus importantes que dans le combustible 2 issus d'un combustible MOX (U/Pu). Par contre, nous retrouvons des évolutions globales semblables avec une augmentation des masses de ^{244}Cm et de ^{242}Cm . Ce dernier atteint rapidement un état d'équilibre après une période de deux ans.

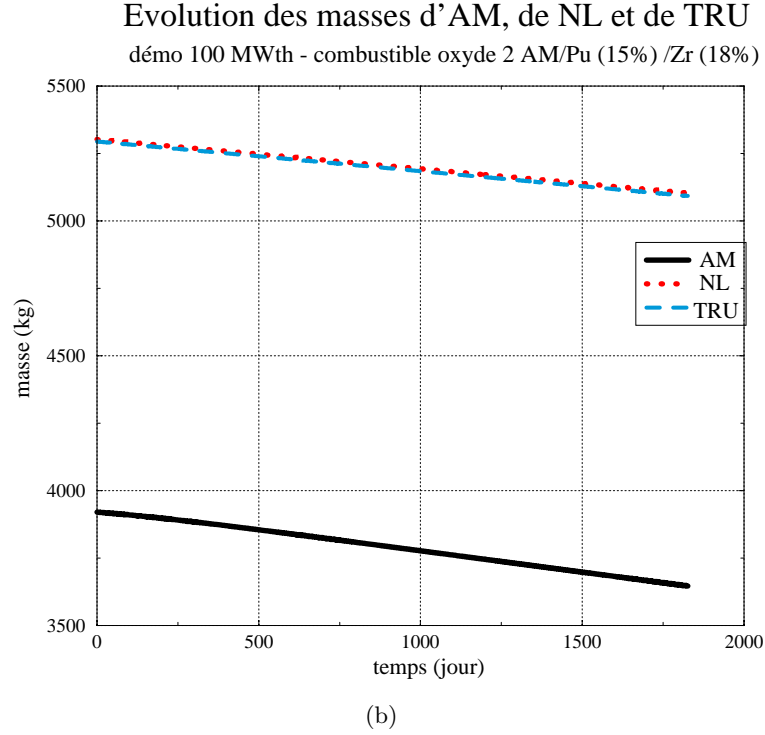
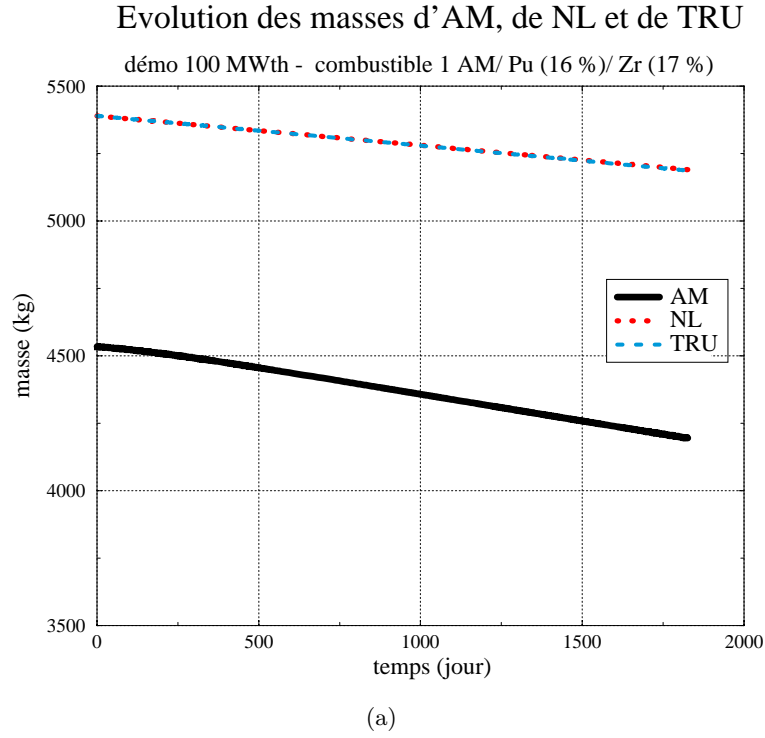


FIG. 3.14 – Evolution des quantit s globales d'actinides mineurs (AM), de noyaux lourds (NL) et de transuraniens (TRU) pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).

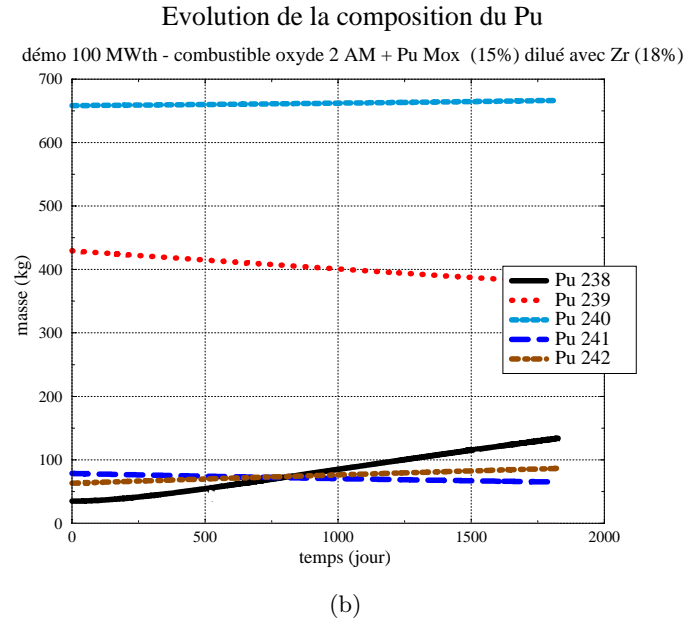
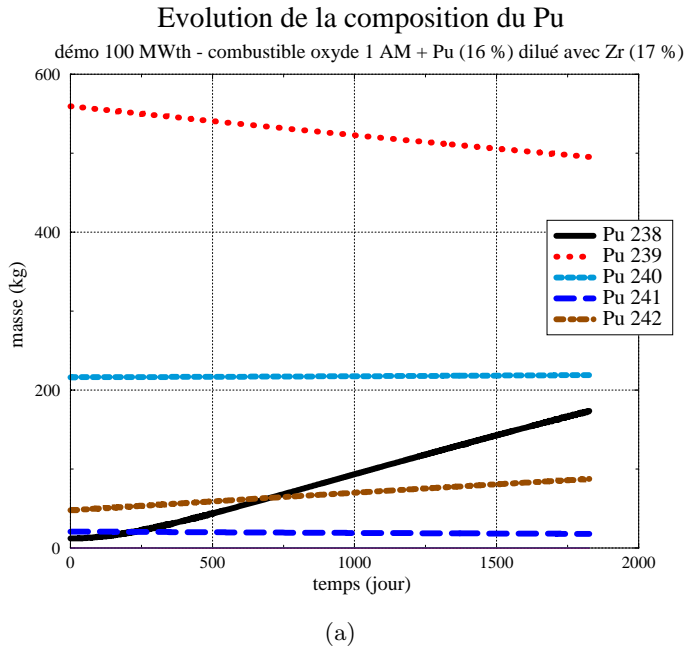


FIG. 3.15 – Evolution des compositions des isotopes du plutonium pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).

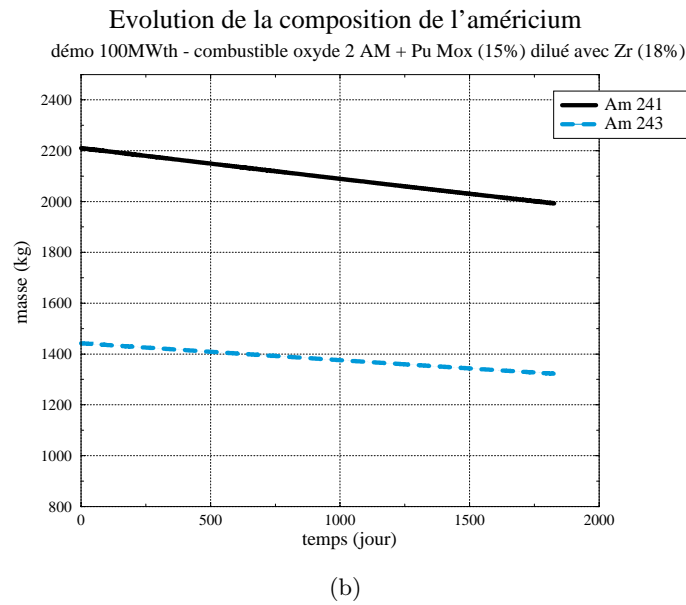
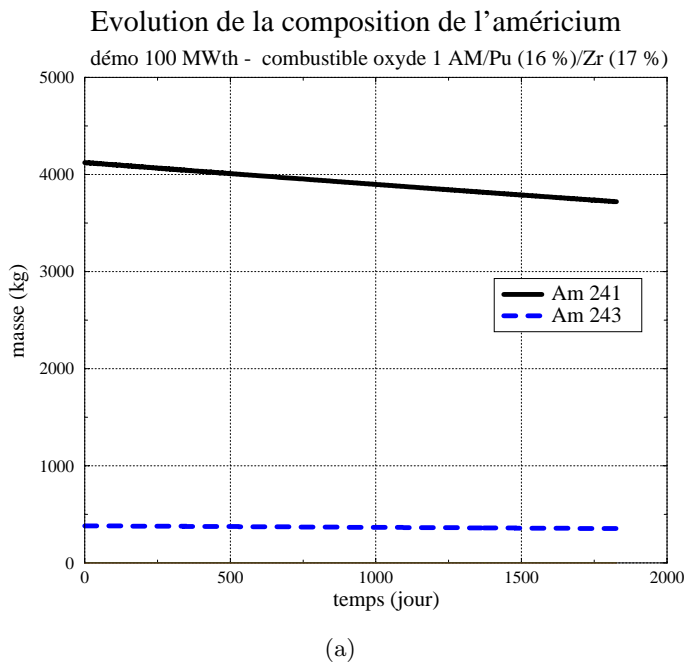


FIG. 3.16 – Evolution des compositions des isotopes de l'américium pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).

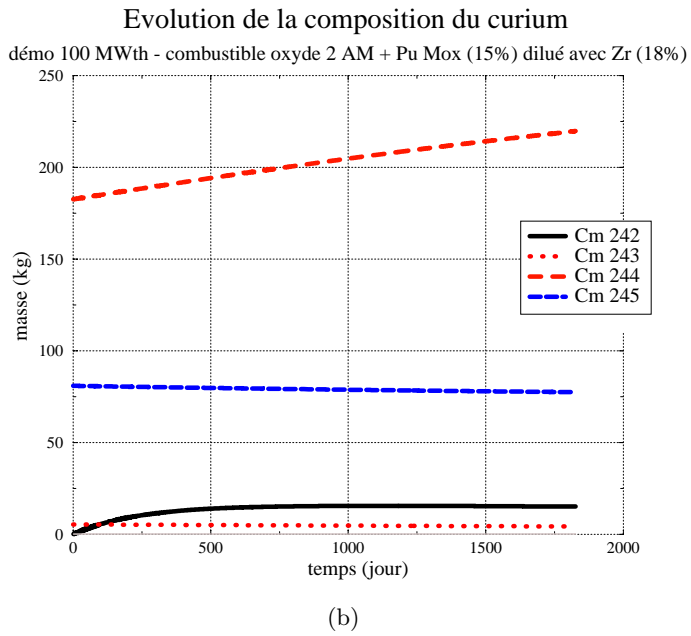
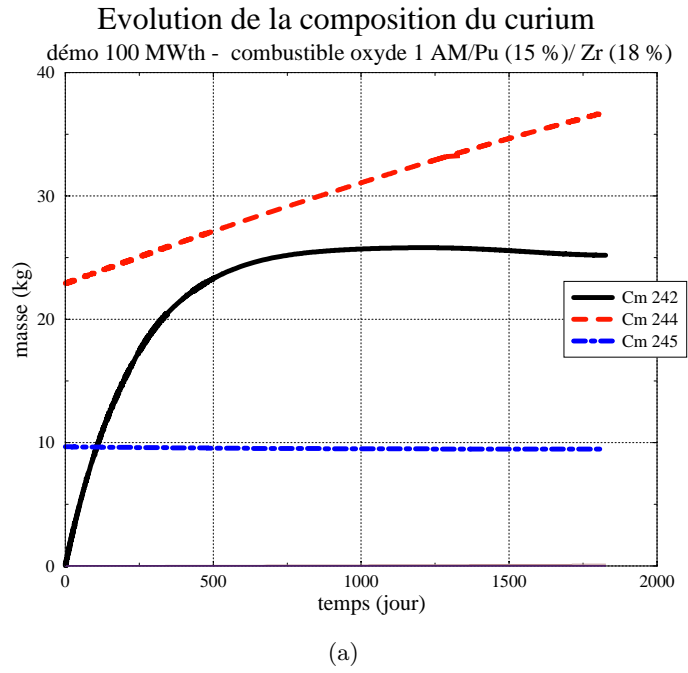
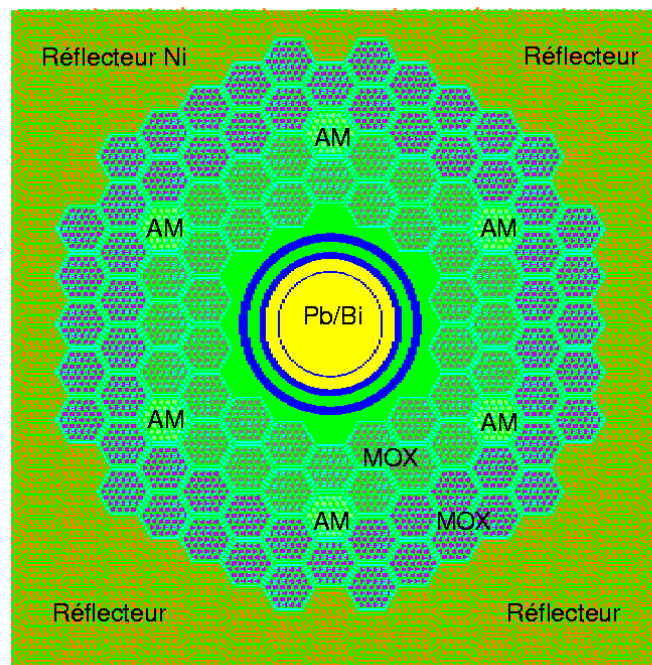


FIG. 3.17 – Evolution des compositions des isotopes du curium pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).

3.2.3 Coeur mixte d'assemblages de combustibles oxydes d'actinides mineurs et de MOX (U/Pu)

Maintenant que nous avons défini une composition de combustible à base d'actinides mineurs garantissant une réactivité stable, nous allons définir les étapes nécessaires à la réalisation effective de ce chargement. Il est bien évident qu'un chargement du cœur avec un tel combustible va se réaliser par étapes. La première étape va consister en un chargement avec seulement quelques assemblages de ce combustible à base d'actinides mineurs pour en étudier le comportement neutronique en vue de sa validation. Nous avons choisi d'étudier dans un premier temps un cœur mixte constitué d'un total de 90 assemblages au sein desquels se trouvent six assemblages de combustible à base d'actinides mineurs. La composition de ces assemblages à base d'actinides mineurs est celle du combustible 2 du paragraphe précédent dont la composition isotopique est rappelée dans le tableau 3.6.



AM : assemblages de combustible oxyde avec 67 % d'actinides mineurs (Am, Cm), 15 % de Pu et 18 % de Zr

MOX : assemblages de combustible MOX (U/Pu) enrichi à 21 % en Pu

FIG. 3.18 – Coupe horizontale du cœur du démonstrateur chargé avec un combustible MOX (U/Pu) enrichi à 21 % en plutonium et six assemblages à base du combustible 2.

Les assemblages à base de combustible MOX (U/Pu) sont constitués du combustible de référence enrichi à 21 % en plutonium. Il a été nécessaire de réduire l'enrichissement pour

compenser la réactivité supplémentaire apportée par les six assemblages de combustible à base d'actinides mineurs. On aurait pu conserver l'enrichissement de 24 % mais il aurait fallu diminuer le nombre d'assemblages du cœur. Nous avons disposé six assemblages de combustible à base d'actinides mineurs pour préserver la symétrie du cœur. Par ailleurs, ils sont insérés au sein du cœur de manière symétrique et ils sont placés radialement entre deux assemblages à base de combustible MOX (U/Pu) (voir figure 3.19). Radialement, l'assemblage de combustible MOX (U/Pu) se trouvant dans la couronne de combustible la plus proche du tube faisceau sera désigné sous le terme d'assemblage intérieur et l'assemblage se trouvant en périphérie du cœur sous le terme d'assemblage extérieur. La puissance est fixée à 100 MWth et est toujours pilotée par l'accélérateur.

Evolution de la réactivité

Dans un premier temps, nous avons évalué l'influence de ces assemblages sur les coefficients de multiplication en comparant l'évolution de k_{eff} entre le cœur de référence formé de 90 assemblages de combustible MOX (U/Pu) enrichi à 24 % de plutonium et le cœur avec les six assemblages à base d'actinides mineurs décrits précédemment. La perte de réactivité sur trois ans est du même ordre de grandeur pour les deux configurations (pertes de 4000 pcm pour le cœur de référence et de 3500 pcm pour le cœur avec les six assemblages à base d'actinides mineurs) bien que légèrement atténuée par la présence des actinides mineurs et un enrichissement en plutonium un peu plus faible du combustible MOX (U/Pu).

Profils de puissance et flux

L'influence des ces assemblages se fait ressentir sur la puissance linéique déposée au sein du crayon. En effet, une discontinuité apparaît dans le profil de la puissance au niveau de l'assemblage à base d'actinides mineurs comme le montre la figure 3.20. Toutefois, le pic de puissance engendré par la présence de l'assemblage à base d'actinides mineurs reste du même ordre de grandeur que le maximum de puissance atteint au centre du cœur.

Par contre, le profil de flux n'est pratiquement pas perturbé par l'introduction de ces assemblages et conserve une forme semblable à celle d'un cœur constitué uniquement de combustible MOX (U/Pu). Le tableau 3.7 donne les flux moyens dans les assemblages de MOX côtés intérieur et extérieur et dans les assemblages à base d'actinides mineurs. Ces valeurs restent relativement constantes au cours du temps. En outre, le spectre énergétique des neutrons est modifié au sein des assemblages à base d'actinides mineurs. Le spectre est "durci" par la présence des actinides mineurs comme le confirme la figure 3.21. Ce spectre plus "dur" favorise la fission des actinides mineurs dont le seuil de réaction est de l'ordre de 600 keV.

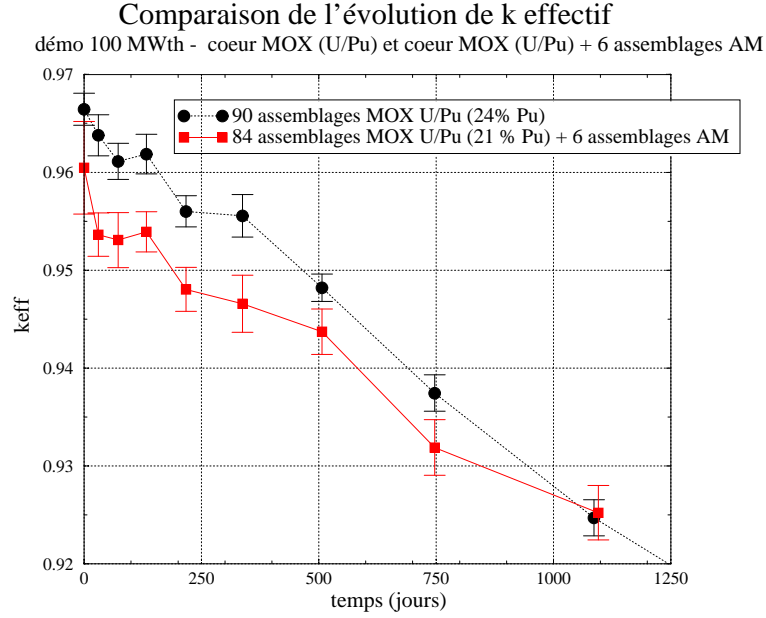


FIG. 3.19 – Comparaison de l'évolution de k_{eff} pour le coeur de référence (combustible de MOX (U/Pu) enrichi à 24 % en plutonium) et le coeur avec les six assemblages à base d'actinides mineurs.

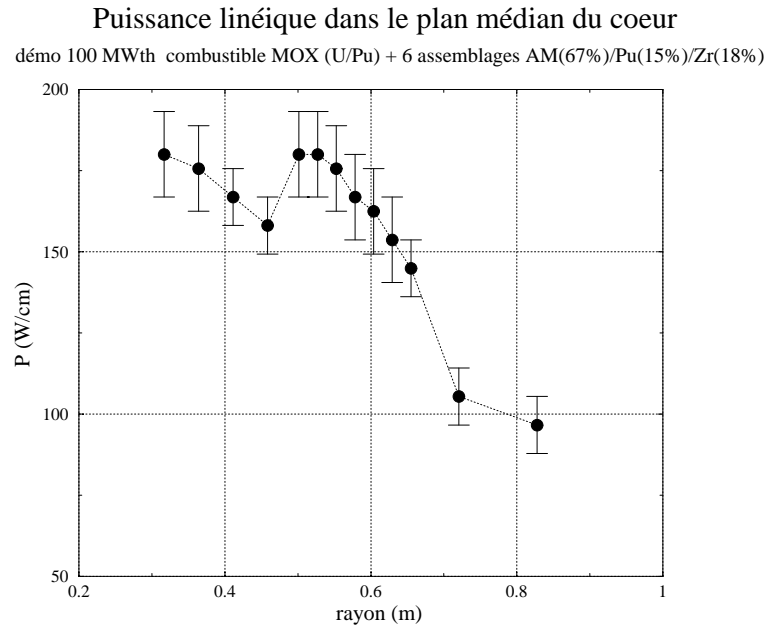


FIG. 3.20 – Profil de puissance linéique dans le plan médian du coeur suivant le rayon au niveau d'un assemblage combustible à base d'actinides mineurs.

Assemblages	MOX (U/Pu) intérieur	AM	MOX (U/Pu) extérieur
Flux ($\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$)	$6.4\text{e}+14$	$5.42\text{e}+14$	$4.39\text{e}+14$

TAB. 3.7 – Flux moyen dans les assemblages MOX intérieurs et extérieurs et dans les assemblages à base d'actinides mineurs après quatre mois.

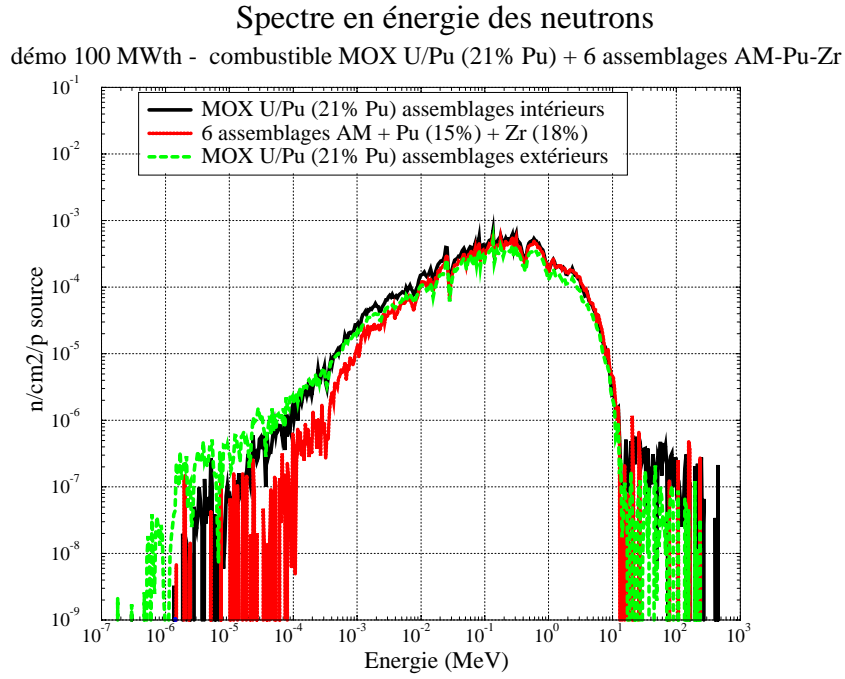


FIG. 3.21 – Comparaison du spectre énergétique des neutrons avec le combustible des assemblages MOX (U/Pu), avec le combustible à base d'actinides mineurs avec six assemblages insérés et un cœur complet.

Evolution des compositions

Il est intéressant de vérifier si l'évolution des assemblages à bases d'actinides est représentative de l'évolution d'un cœur complet d'actinides mineurs de même composition. Il s'agit notamment de vérifier que l'on retrouve des consommations relatives du même ordre de grandeur. Les masses des différents éléments présents dans les six assemblages à base d'actinides mineurs au démarrage sont rappelées dans le tableau 3.8 où on trouve en majorité de l'américium pour environ 240 kg, du plutonium pour 85 kg et du curium pour 18 kg.

Isotope	Masse (kg)
^{234}U	0.373
^{236}U	0.125
^{237}Np	7.34
^{238}Pu	2.32
^{239}Pu	28.77
^{240}Pu	44.06
^{241}Pu	5.24
^{242}Pu	4.21
^{241}Am	147.89
^{243}Am	96.50
^{243}Cm	0.36
^{244}Cm	12.21
^{245}Cm	5.41
Zr	86.57
O	47.05

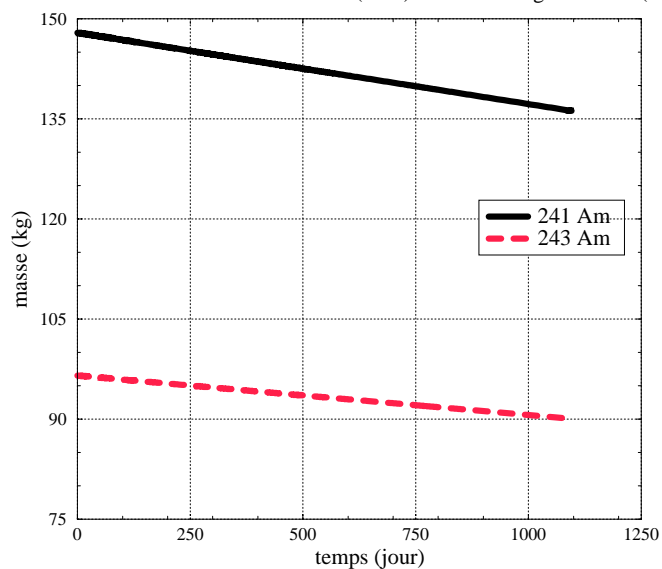
TAB. 3.8 – *Masses totales des éléments présents dans les six assemblages à base d'actinides mineurs.*

Nous avons comparé les consommations relatives des principaux actinides mineurs et du plutonium sur une période de trois ans entre un cœur complet à base du même combustible et les six assemblages à base d'actinides mineurs dans un cœur de MOX (U/Pu). Ces consommations relatives sont données dans le tableau 3.9, elles présentent des valeurs avec des écarts importants bien que les évolutions présentent globalement les mêmes comportements. Les flux moyens au niveau des six assemblages sont du même ordre de grandeur dans les deux configurations par contre le spectre est durci dans le cas du cœur formé entièrement d'assemblages à base d'actinides mineurs. La comparaison entre les spectres est donnée sur la figure 3.24.

En conclusion, on peut considérer que les consommations relatives obtenues avec le cœur formé de MOX (U/Pu) au sein duquel on a incorporé six assemblages à base d'actinides mi-

Composition de l'Am dans les 6 assemblages AM/Pu/Zr

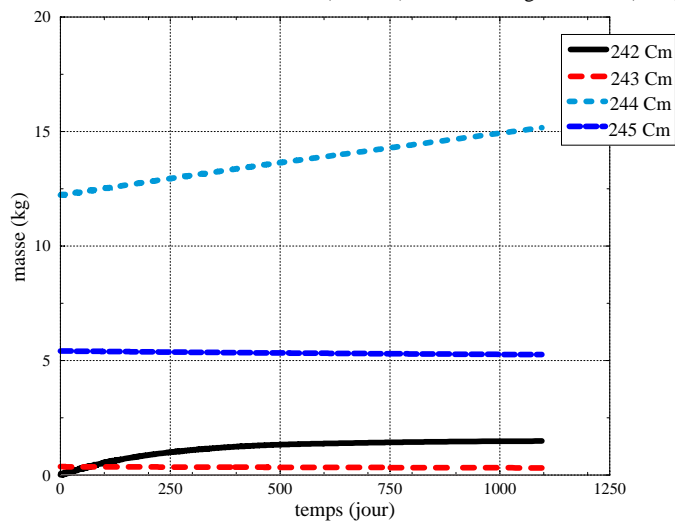
démo 100 MWth - combustible MOX U/Pu (21%) + 6 assemblages AM/Pu (15%)/Zr (18%)



(a)

Composition du Cm dans les 6 assemblages AM/Pu/Zr

démo 100 MWth - combustible MOX U/Pu (21% Pu) + 6 assemblages AM/Pu (15%)/Zr (18%)



(b)

FIG. 3.22 – Evolution des compositions de l'américium (a) et du curium (b).

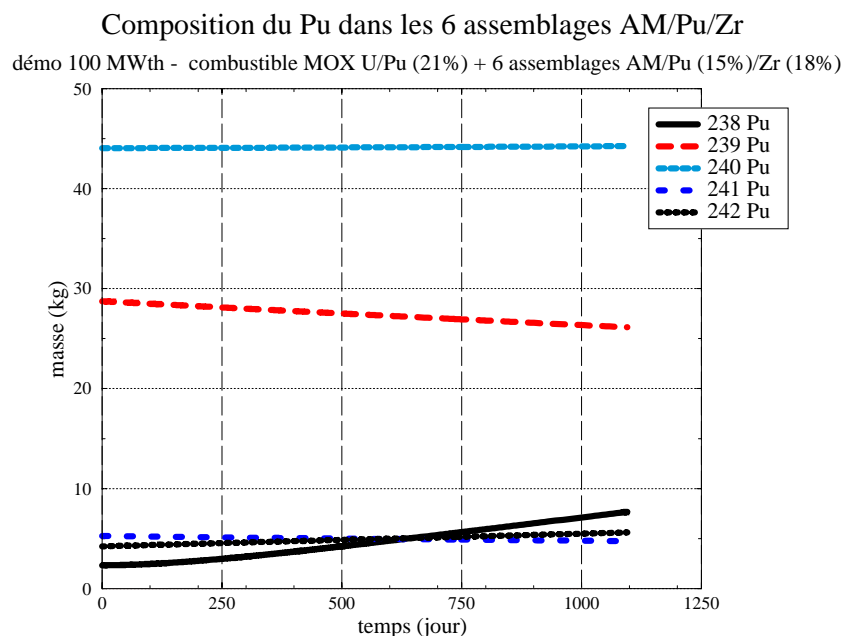


FIG. 3.23 – Evolution de la composition isotopique du plutonium dans les 6 assemblages à base d'actinides mineurs.

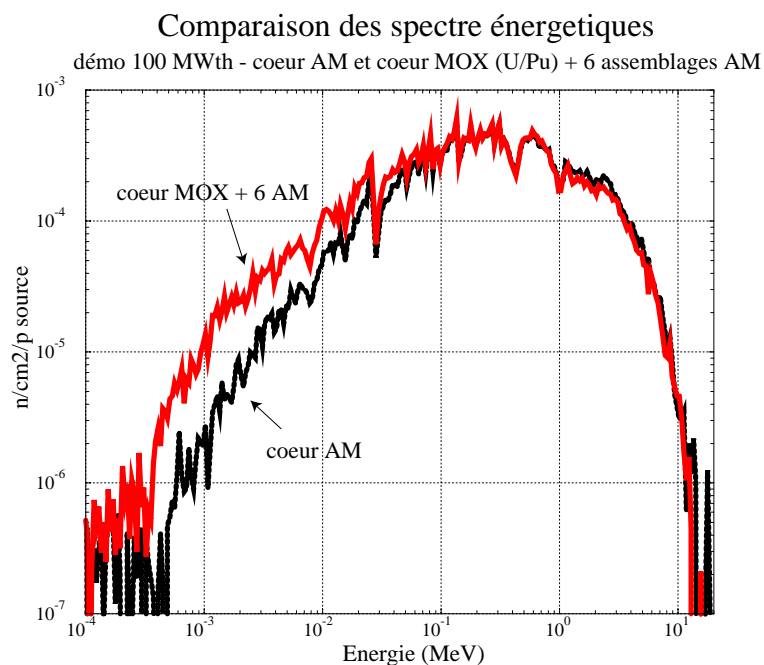


FIG. 3.24 – Comparaison des spectres énergetiques des neutrons pour un cœur entier avec un combustible constitué d'actinides mineurs et un cœur formé d'assemblages MOX (U/Pu) et de six assemblages d'actinides mineurs.

neurs évolueront dans le même sens mais les valeurs des consommations relatives ne seront pas représentatives d'un cœur complet formé uniquement d'assemblages à base d'actinides mineurs en relation avec des spectres neutroniques différents.

Isotope	Cœur AM complet (%)	Cœur MOX et 6 assemblages AM (%)	Ecart relatif (%)
^{238}Pu	-156.	-230.	47
^{239}Pu	7.2	9.1	26
^{240}Pu	-0.3	-0.4	33
^{241}Pu	11.8	9.5	7
^{242}Pu	-21.9	-32.7	49
^{241}Am	6.1	7.9	29
^{243}Am	5.1	6.7	31
^{244}Cm	-11.9	-24.	101
^{245}Cm	3.2	3.0	6

TAB. 3.9 – *Consommations relatives pour une durée de trois ans entre un cœur complet constitué d'assemblages à base d'actinides mineurs et un cœur mixte constitué d'assemblages MOX (U/Pu) enrichi à 21 % en plutonium et six assemblages à base d'actinides mineurs.*

3.3 Chargement en combustible oxyde thorium-plutonium MOX (Th/Pu)

Dans des perspectives à plus long terme [61], il est préférable de s'orienter vers un combustible moins générateur de déchets et notamment d'actinides mineurs [62]. Il est nécessaire de rappeler ici que la radiotoxicité hors produits de fission d'un combustible oxyde irradié basé sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ est environ 100 fois moins élevée que celle d'un combustible oxyde basé sur le cycle $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$. Dans cette optique, le cycle basé sur le thorium [63] présente des avantages indiscutables en termes de réduction de la radiotoxicité. La mise en place d'une filière basée sur le cycle régénérateur $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ nécessite une période de transition à partir d'un combustible thorium-plutonium de manière à générer une quantité suffisante d' ^{233}U pour son démarrage [23]. Dans ce but, nous avons souhaité évaluer les performances d'un démonstrateur chargé en combustible thorium-plutonium et notamment les quantités d' ^{233}U produites. Le démonstrateur est composé de 90 assemblages combustibles autour de la cible de référence, la puissance, fixée à 100 MWth est pilotée par l'accélérateur. Le vecteur isotopique du plutonium est celui du combustible de référence (tableau 1.3) où l'uranium est remplacé par du ^{232}Th . L'enrichissement en plutonium est de 26.75 % ce qui induit un k_{eff} de démarrage de 0.96 pour une masse de combustible de 7.55 tonnes. L'évolution des facteurs de multiplication k_{eff} et k_s est donnée sur

la figure 3.25. Le comportement de la réactivité est comparable à celle d'un combustible MOX (U/Pu) avec une décroissance de la réactivité légèrement inférieure (2500 pcm sur trois ans). Nous notons également que le comportement du facteur k_s suit bien l'évolution du facteur k_{eff} .

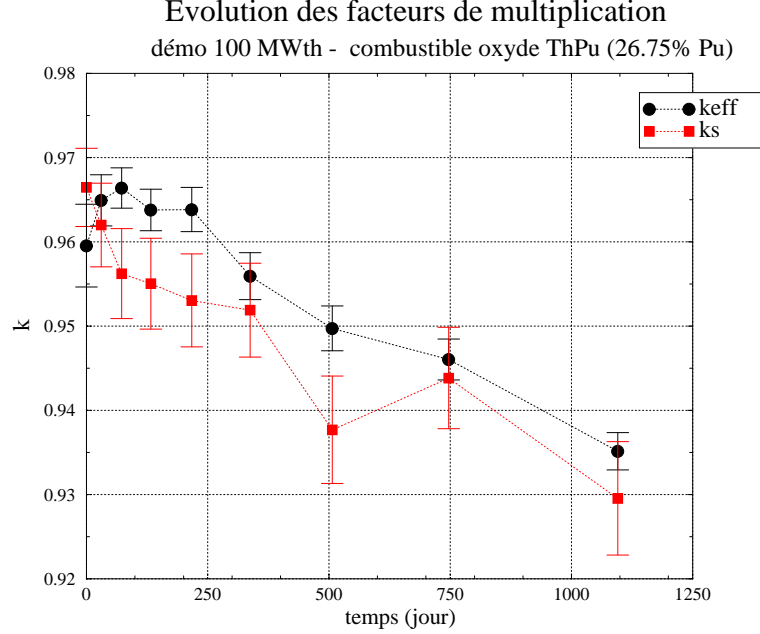
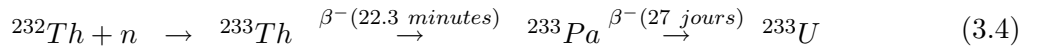


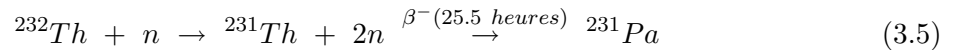
FIG. 3.25 – Evolution des facteurs de multiplication k_{eff} et k_s pour un combustible thorium-plutonium enrichi à 26.75 % en Pu.

La production d' ^{233}U résulte du processus de capture neutronique sur le ^{232}Th qui génère l' ^{233}U via le ^{233}Pa et deux décroissances β^- (comme la transformation de l' ^{238}U vers le ^{239}Pu via le ^{239}Np) :



Les productions d' ^{233}U et de ^{233}Pa sur une période de trois ans sont indiquées sur la figure (6.4).

La quantité de ^{233}Pa se stabilise rapidement autour de 2,5 kg après environ 250 jours. Cette stabilisation du ^{233}Pa résulte d'un équilibre entre sa décroissance radioactive rapide en 27 jours et sa production par réaction de capture (n, γ) sur le ^{232}Th via la décroissance radioactive β^- du ^{233}Th . Par ailleurs, de faibles quantités de ^{231}Pa de 32000 ans de période sont produites à partir d'une réaction ($n, 2n$) sur le ^{232}Th comme indiqué sur le processus suivant :



D'après la référence [23], ce ^{231}Pa est l'élément qui domine la radiotoxicité à moyen et long terme (au-delà de 1000 ans) dans une filière à base de thorium. La production d' ^{233}U envisageable avec le démonstrateur est de 65 kg sur une période de trois ans pour une puissance

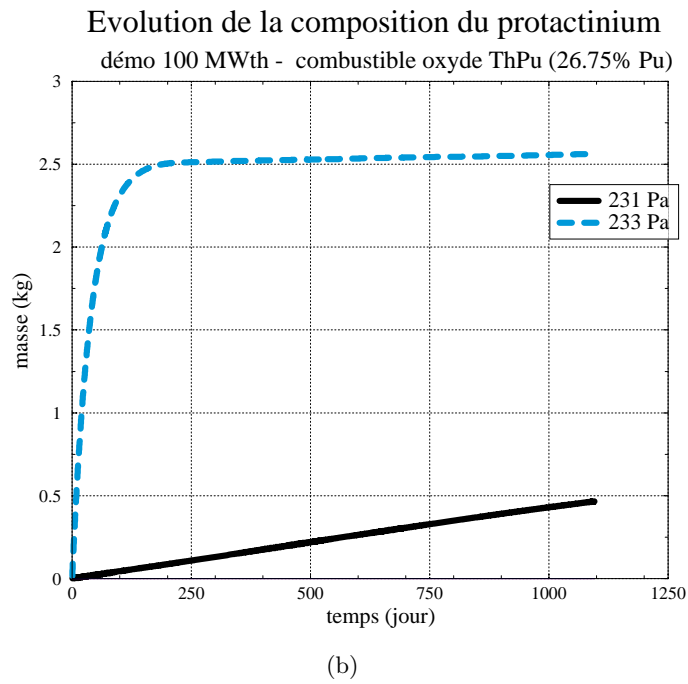
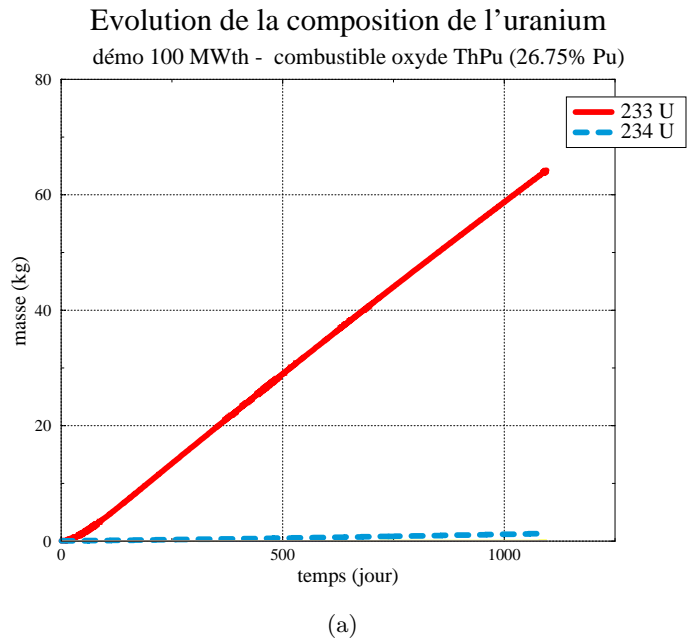


FIG. 3.26 – Evolution des masses de l' ^{233}U (a) et du ^{233}Pa (b) pour un combustible MOX thorium-plutonium enrichi   26.75 % en Pu.

de 100 MWth ce qui correspond à 74 kg/TWhé. La section efficace de fission de l' ^{233}U étant relativement élevée (2,72 barns) et sa probabilité de fission particulièrement intéressante (tableau 3.10), un retraitement rapide de l' ^{233}U serait nécessaire pour éviter sa consommation à la place du plutonium et pour démarrer rapidement une filière ^{232}Th - ^{233}U sans plutonium. L'évolution des différents isotopes du plutonium est donnée sur la figure (3.27). On retrouve la même évolution que pour le combustible MOX (U/Pu) à savoir une consommation des éléments fissiles (^{238}Pu en spectre rapide de neutrons rapides, ^{239}Pu et ^{241}Pu). Par ailleurs, la présence d'isotopes fertiles du plutonium et d' ^{241}Am conduit à la création d'actinides mineurs dans des proportions semblables à celles d'un combustible MOX (U/Pu) comme le confirme la figure 3.28 qui présente les quantités globales d'actinides mineurs et de produits de fission engendrées. Les actinides mineurs créés sont essentiellement par ordre d'importance de l' ^{241}Am (+ 20.2 kg en 3 ans) par décroissance β^- du ^{241}Pu , de l' ^{243}Am (+ 2.8 kg en 3 ans) et du ^{242}Cm (+ 0.5 kg en 3 ans). Enfin, la masse de produits de fission générée en trois ans est d'environ une centaine de kilogrammes.

Isotope	σ_f	σ_c	$\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$
^{232}Th	0.012	0.312	26.31
^{231}Pa	0.27	2.86	11.11
^{233}Pa	0.07	1.03	14.28
^{233}U	2.73	0.27	0.098
^{234}U	0.36	0.68	1.92

TAB. 3.10 – *Sections efficaces moyennes de fission et de capture et rapport α des principaux isotopes présents du thorium, du protactinium et de l'uranium à l'instant initial.*

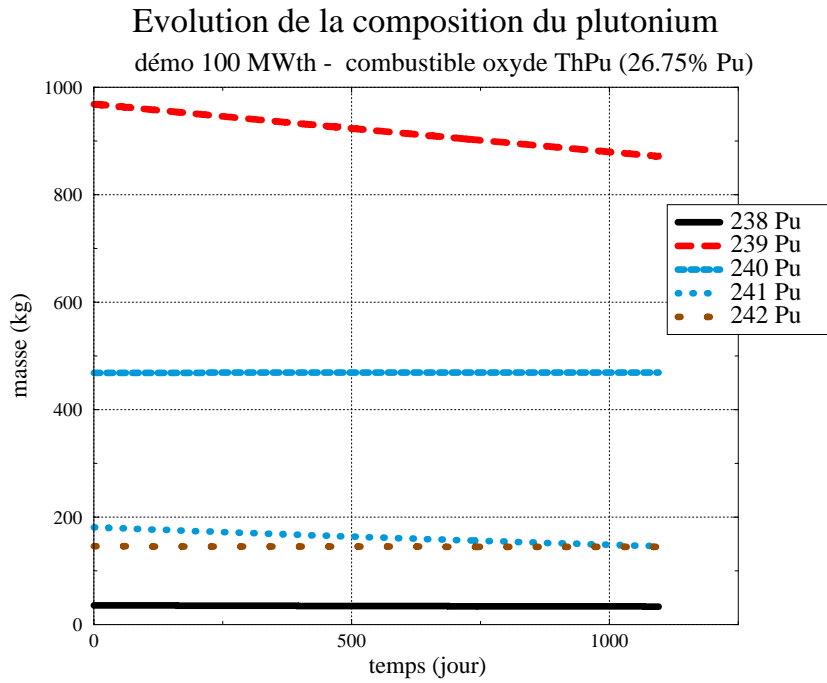


FIG. 3.27 – Evolution des masses des diff rents isotopes du plutonium d’un combustible MOX thorium-plutonium enrichi   26.75 % en plutonium.

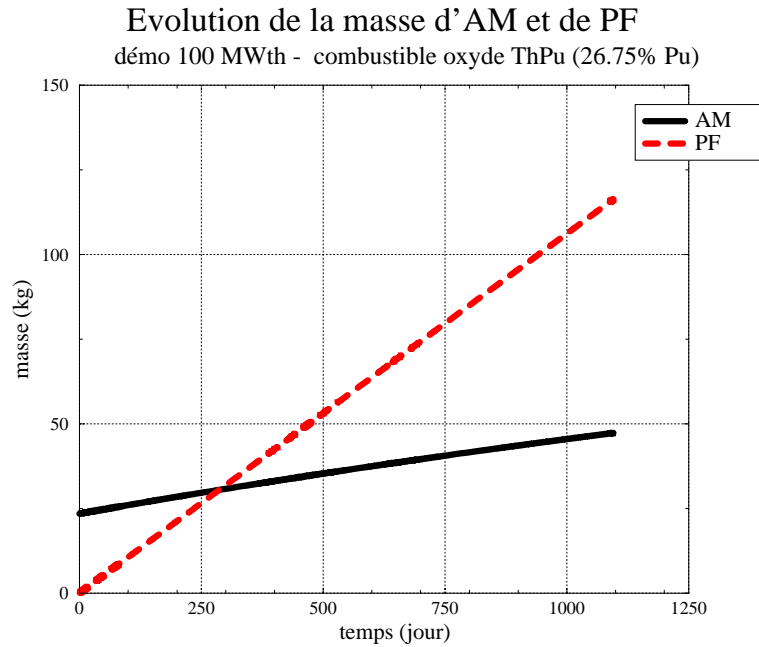


FIG. 3.28 – Evolution des masses globales de produits de fission (PF) et d’actinides mineurs (AM) d’un combustible MOX thorium-plutonium enrichi   26.75 % en plutonium.

3.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons examiné différents combustibles envisageables, à partir des phases de démonstration définies précédemment au chapitre 1. Dans un premier temps, nous avons considéré le combustible MOX (U/Pu) de référence pour la phase de validation et de fiabilisation du démonstrateur. Les calculs d'évolution avec ce combustible ont permis de déterminer la perte de réactivité associée et les variations d'intensité à prévoir dans le cas d'un pilotage de l'installation par l'accélérateur. Dans un deuxième temps, nous avons évalué le comportement d'un combustible à base d'actinides mineurs sous forme d'oxyde et son influence sur la réactivité. Il apparaît une augmentation de la réactivité suite à la transformation des isotopes fertiles de l'américium (^{241}Am et ^{243}Am) présents en quantité importante vers des isotopes fissiles du plutonium (^{238}Pu et ^{240}Pu) en spectre de neutrons rapides. Cette augmentation de la réactivité n'est pas souhaitable pour la sûreté de l'installation. L'ajout d'une proportion de l'ordre de 15-16 % de plutonium et avec l'incorporation d'environ 17-18 % de zirconium dans le rôle de matrice inerte pour limiter la puissance volumique, permet d'obtenir une réactivité stable sur une longue période. Du point de vue des performances d'incinération, les consommations spécifiques obtenues montrent une réduction importante des quantités d'américium mais en contre-partie une augmentation des quantités de ^{244}Cm et de ^{238}Pu . Par ailleurs, un multi-recyclage avec des périodes de refroidissement suffisamment longues permettrait de profiter de la décroissance α du ^{244}Cm et donc d'en stabiliser l'inventaire. De même, il est évident que la réalisation d'un combustible à base d'actinides mineurs est dépendant de la mise en place d'une unité de séparation poussée dont l'échéance est difficilement prévisible, même si la faisabilité technique devrait être démontrée pour 2005. Dans un souci de pragmatisme, nous avons considéré deux combustibles à base d'actinides mineurs issus des combustibles UOX et MOX (U/Pu) actuellement stockés à La Hague avec une phase de refroidissement importante pour réduire son impact radiologique lors de son intégration. Pour le démonstrateur, une première étape consistera en un chargement avec un nombre limité d'assemblages à base d'actinides mineurs. Pour conserver la symétrie du cœur, nous avons incorporé six assemblages à base d'actinides mineurs au sein du cœur formé d'assemblages de combustible MOX (U/Pu). Il en ressort une discontinuité du profil de puissance au niveau de ces six assemblages mais dont la valeur maximale atteinte reste acceptable. En ce qui concerne les consommations relatives des actinides mineurs dans ces assemblages, elles n'apparaissent pas représentatives de celles du chargement total du cœur en relation avec des spectres neutroniques différents. Le spectre d'un combustible à base d'actinides mineurs est notablement plus "dur". Enfin, dans des perspectives de développement à plus long terme de l'énergie nucléaire, nous avons envisagé un chargement à base d'un combustible oxyde de thorium-plutonium nécessaire à la transition vers un cycle thorium-uranium moins générateur d'actinides mineurs. Avec ce combustible, nous avons obtenu

les quantités d' ^{233}U et de ^{233}Pa produites et les quantités de plutonium consommées dans le cadre du démonstrateur. De l'ensemble de ces résultats, il ressort que le démonstrateur devra avant tout permettre de valider des combustibles variés en vue de la réalisation d'un incinérateur de puissance et d'explorer des combustibles plus prospectifs en vue du développement futur de nouvelles filières à base de thorium.

Chapitre 4

Transmutation des produits de fission dans le réflecteur

4.1 Rappels sur la transmutation

L'objectif est d'utiliser le surplus de neutrons et les neutrons qui s'échappent du cœur pour permettre des réactions de capture sur certains produits de fission et induire leur transmutation en élément stable ou de période plus courte. Par ailleurs, nous allons montrer que le surplus de neutrons est d'autant plus élevé que la sous-criticité est importante.

4.1.1 Demi-vie effective

Une grandeur importante pour caractériser l'efficacité de la transmutation est la demi-vie effective. Elle est définie comme la période nécessaire pour réduire de moitié la quantité d'un élément soumis à un flux de neutrons. On définit la demi-vie effective par :

$$T^{eff} = \frac{\ln 2}{\lambda_{nat} + \sigma_{(n,\gamma)}\phi} \quad (4.1)$$

Dans le cas des produits de fission, la section efficace est celle de la réaction (n,γ) . Pour des éléments de périodes radioactives suffisamment longues ($\lambda_{nat} \gg \sigma\phi$), la demi-vie effective après une irradiation pendant la durée t sous le flux constant ϕ est

$$T^{eff} \approx \frac{\ln 2}{\sigma\phi} = \frac{t \ln 2}{\ln\left(\frac{n_i(0)}{n_i(t)}\right)} \quad (4.2)$$

où $n_i(0)$ et $n_i(t)$ sont respectivement le nombre de noyaux de l'élément à transmuter à l'instant initial et à l'instant t .

4.1.2 Neutrons disponibles

Un système sous-critique permet de disposer d'un nombre de neutrons pour la transmutation supérieur à un réacteur critique [23], ce qui engendre des taux de transmutation notablement meilleurs. En effet, le nombre de neutrons disponibles, noté N_d , correspond au nombre de neutrons qui ne servent pas à produire une fission dans le combustible. Nous allons quantifier ce nombre de neutrons disponibles dans un réacteur hybride. Le nombre total de neutrons par neutron source, noté N_{tot} , est donné d'après la relation 1.13, par :

$$N_{tot} = \frac{1}{1 - k_s} \quad (4.3)$$

Par ailleurs, d'après la relation 1.15, le nombre de fissions par neutron source est :

$$N_{fiss} = \frac{1}{\nu} \frac{k_s}{1 - k_s} \quad (4.4)$$

De plus, le nombre de neutrons nécessaire pour créer ces N_{fiss} fissions est :

$$(1 + \alpha)N_{fiss} \quad (4.5)$$

avec $\alpha = \frac{\sigma_{cap}}{\sigma_{fiss}}$, le rapport des sections efficaces microscopiques de capture et de fission dans le combustible.

Le nombre de neutrons disponibles par neutron source est alors donné par la différence entre le nombre total de neutrons et le nombre de neutrons absorbés dans le combustible :

$$N_d = \frac{1}{1 - k_s} - (1 + \alpha)N_{fiss} \quad (4.6)$$

d'où d'après la relation 1.15 :

$$N_d = N_{fiss} \frac{\nu}{k_s} - (1 + \alpha)N_{fiss} \quad (4.7)$$

Soit :

$$N_d = N_{fiss} \left(\frac{\nu}{k_s} - 1 - \alpha \right) \quad (4.8)$$

Dans le cas d'un réacteur critique le nombre de neutrons disponibles, noté $N_d^{critique}$, est donné par :

$$N_d^{critique} = N_{fiss}(\nu - 1 - \alpha) \quad (4.9)$$

De cette dernière relation, nous déduisons que plus le système est sous-critique à puissance constante et plus le nombre de neutrons disponibles pour la transmutation est élevé d'où l'intérêt d'un réacteur hybride pour la transmutation [24]. La différence de neutrons disponibles entre un réacteur critique et un réacteur sous-critique correspond à $\frac{\nu}{k_s} - \nu$ et les ordres de grandeurs sont donnés dans le tableau 4.1.

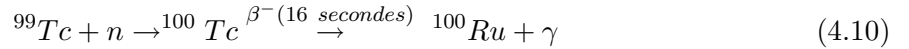
Combustible	spectre neutronique	ν	$N_d - N_d^{critique}$ par fission
^{238}U - ^{239}Pu	thermique	2.871	0.151
^{238}U - ^{239}Pu	rapide	2.980	0.156
^{232}Th - ^{233}U	thermique	2.492	0.131
^{232}Th - ^{233}U	rapide	2.492	0.131

TAB. 4.1 – Comparaison du nombre de neutrons disponibles par fission entre un réacteur critique et un réacteur sous-critique avec un k_s fixé à 0.95.

Le gain apporté est modeste mais pour fixer les idées, il est supérieur au nombre de neutrons consommés dans les barres de pilotage d'un réacteur critique (de l'ordre de 0.1 neutron par fission). De plus, le bilan neutronique des réacteurs critiques étant relativement "tendu", l'apport de la sous-criticité permettrait notamment la régénération d'un système basé sur un combustible ^{238}U - ^{239}Pu avec un spectre de neutrons thermiques ce qui demeure impossible avec un réacteur critique.

4.2 Transmutation du ^{99}Tc

Le ^{99}Tc est le premier produit de fission de longue période radioactive (210000 ans) en quantité. Le ^{99}Tc est soluble dans l'eau et il est à craindre qu'après une longue période de stockage, il soit libéré sous la forme d'ions TcO_4^- . La transmutation du ^{99}Tc est rendue possible par la réaction (n, γ) suivante :



Le ^{100}Ru ainsi créé est un élément stable ainsi que le ^{101}Ru . L'efficacité de cette réaction est fortement dépendante de l'énergie des neutrons. En effet, la section efficace du ^{99}Tc donnée sur la figure 4.1 présente des résonances importantes présentées avec leur largeur à mi-hauteur Γ_γ dans le tableau 4.2.

Energie (eV)	$\Gamma_\gamma(\text{meV})$
5.584	149.2
20.274	150.3
39.841	136.9
56.677	154.6

TAB. 4.2 – Energie des principales résonances de capture (n, γ) du ^{99}Tc ainsi que leur largeur à mi-hauteur Γ_γ d'après la référence [64].

Le moyen utilisé pour cette transmutation est de réaliser un ralentissement progressif des

neutrons de sorte que la perte moyenne d'énergie par choc amène les neutrons à l'énergie des résonances. Il s'agit du principe TARC (Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing) [65].

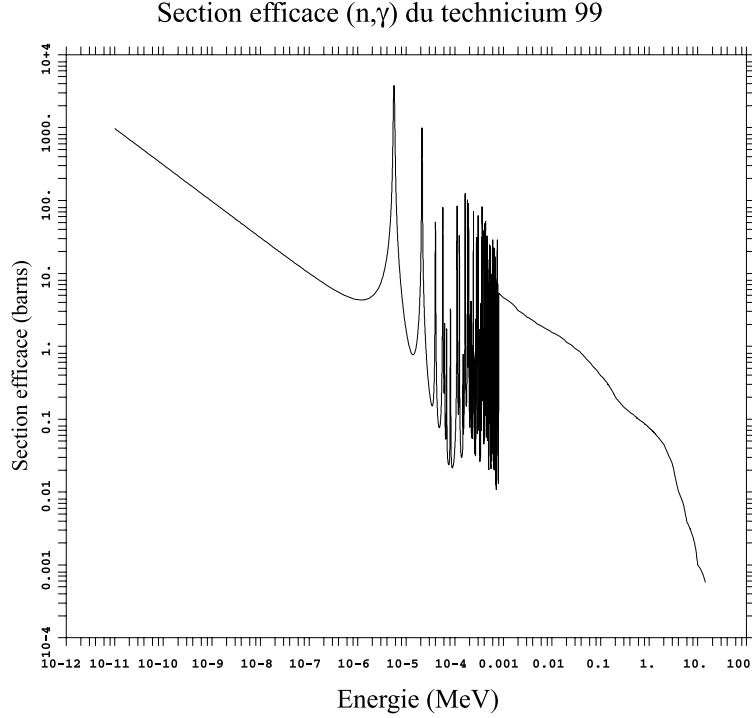


FIG. 4.1 – Section efficace de capture (n,γ) du ^{99}Tc .

4.2.1 Optimum du taux de capture

Nous avons choisi de transmuter le ^{99}Tc dans un assemblage dédié placé au sein du réflecteur en nickel. Des points particuliers restent à déterminer, notamment l'emplacement idéal au sein du réflecteur et la géométrie de l'assemblage. Pour l'emplacement, un compromis optimal doit être trouvé entre la valeur du flux et de la section efficace moyenne de capture du ^{99}Tc . En effet, plus on s'éloigne du cœur, et plus le flux sera faible (figure 4.2 a) mais plus l'énergie des neutrons sera favorable (spectre plus thermalisé) et plus la section efficace moyenne de capture du ^{99}Tc augmentera (figure 4.2 b). Nous avons donc considéré l'évolution radiale du taux de réaction de capture ($\sigma_{(n,\gamma)}\phi$) du ^{99}Tc dans le réflecteur en nickel naturel.

Il apparaît d'après la figure 4.3 une position optimale pour réaliser la transmutation du ^{99}Tc dans le démonstrateur. Cette position se situe après une trentaine de centimètres de réflecteur. Pour des tubes hexagonaux ayant un pas de 13.93 cm, c'est dans les deuxième et troisième rangées d'assemblages du réflecteur que la transmutation sera optimisée. Au-delà, le taux de réaction chute rapidement. Nous allons donc positionner nos assemblages à cette position la plus favorable du réflecteur. A cette position, la section efficace moyenne de capture du ^{99}Tc est

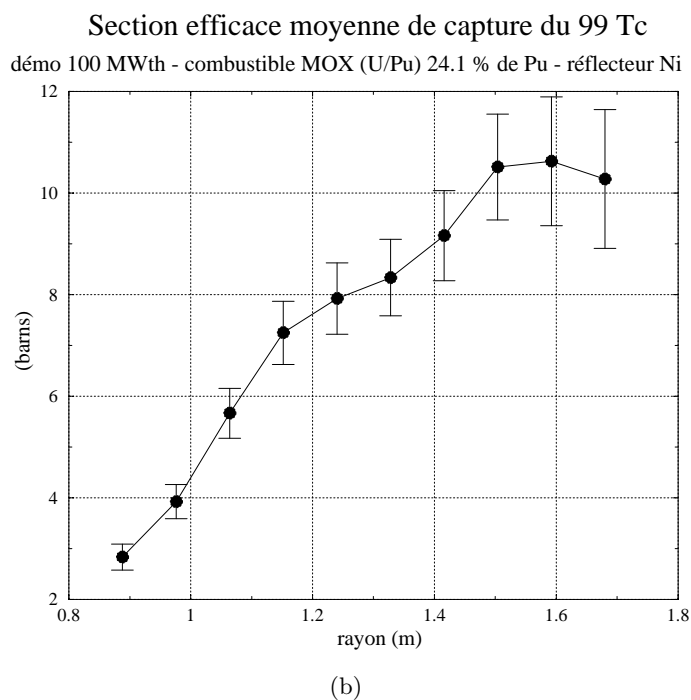
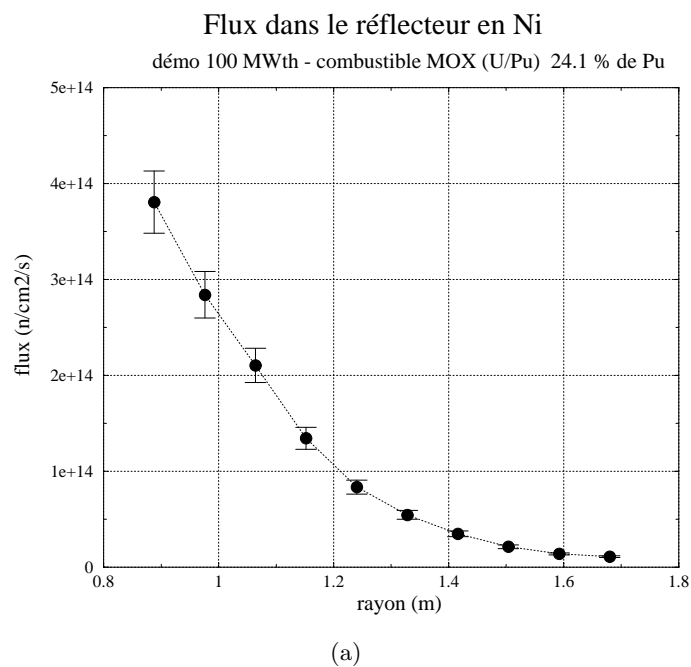


FIG. 4.2 – Evolution du flux (a) dans le réflecteur et de la section efficace moyenne de capture du ^{99}Tc pour une proportion de 0.01 % de ^{99}Tc (b) en fonction de la distance au centre du cœur.

d'environ 6 barns pour une proportion de 0.01 % de ^{99}Tc à comparer avec une section efficace moyenne de 0.6 barn dans le cœur.

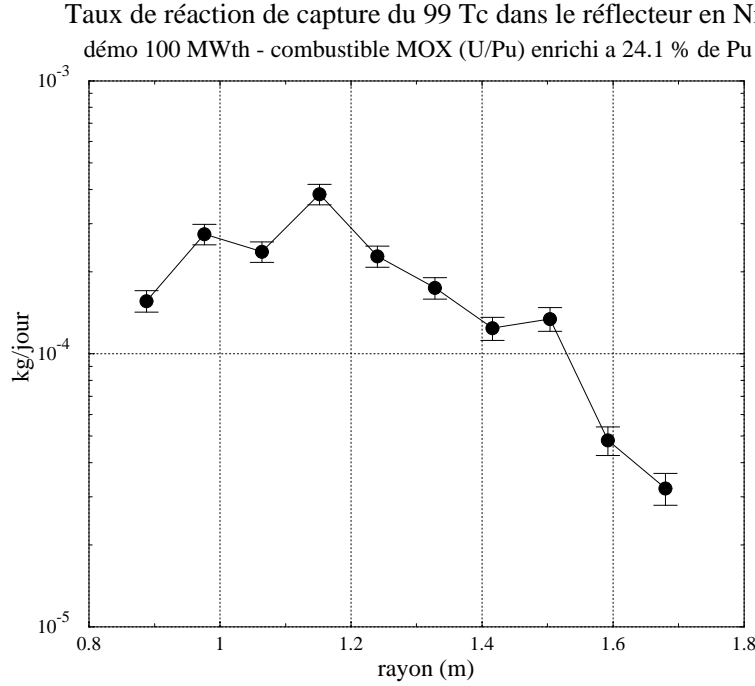


FIG. 4.3 – Taux de réaction de capture (n, γ) du ^{99}Tc dans un réflecteur en nickel naturel de un mètre d'épaisseur en fonction de la distance au centre du cœur.

4.2.2 Influence du ralentissement

Pour favoriser les captures par le ^{99}Tc , nous avons opté pour une dilution du ^{99}Tc dans un milieu fortement diffusant, peu absorbant et assurant une thermalisation progressive des neutrons. Un tel milieu assure une circulation importante des neutrons favorable à leur capture par le ^{99}Tc . Dans le concept TARC, c'est le plomb qui assure ce rôle. Nous n'avons pas souhaité insérer du plomb dans le cœur pour des raisons de sûreté. Nous avons choisi de diluer le ^{99}Tc sous forme métallique au sein d'une matrice en nickel naturel. Le nickel présente les propriétés neutroniques requises. En effet, sa section efficace de diffusion est quasi constante, de l'ordre de 20 barns pour une énergie des neutrons entre 1 keV et 0.1 eV comme le confirme la figure 4.4.

On définit la perte moyenne d'énergie cinétique par choc, notée $\overline{\Delta E}$, par :

$$\overline{\Delta E} = \frac{E_0}{2}(1 - \alpha) \quad (4.11)$$

avec :

- E_0 l'énergie cinétique initiale du neutron,
- $\alpha = \left(\frac{A-1}{A+1}\right)^2$ le paramètre de collision avec A le nombre de masse du noyau de recul.

Dans ces conditions, il n'est pas souhaitable de mettre des assemblages modérés avec d'hydrure de calcium (CaH_2) comme envisagé dans la référence [66], qui engendrerait un ralentissement trop rapide des neutrons par diffusion sur les atomes d'hydrogene et diminuerait leur probabilité de capture au niveau des résonances. Dans le cas du nickel, la perte d'énergie cinétique moyenne par choc est alors $\overline{\Delta E} \approx \frac{E_0}{30}$ à comparer à $\overline{\Delta E} \approx \frac{E_0}{100}$ dans le cas du plomb.

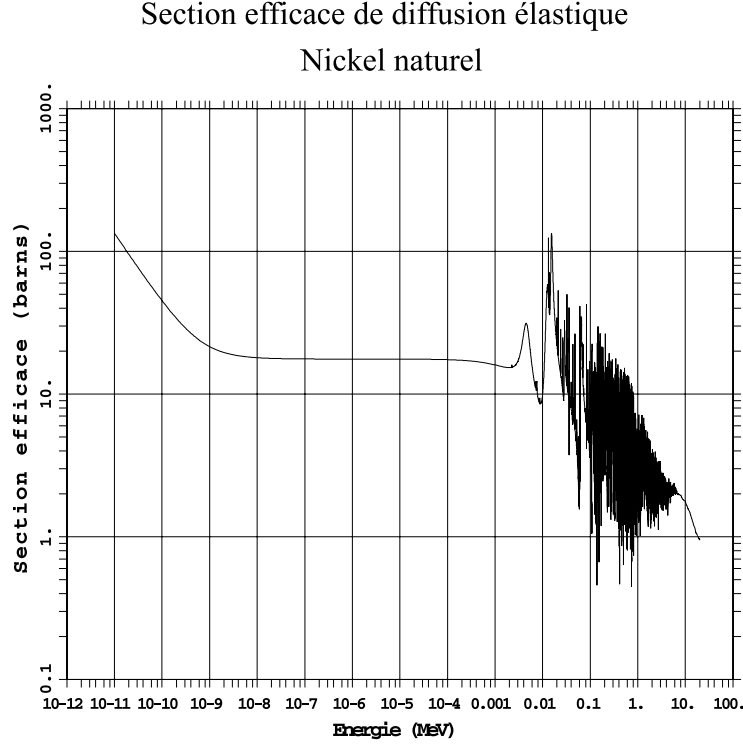


FIG. 4.4 – Section efficace de diffusion élastique du nickel naturel d'après la base ENDF/B-VI.

On peut définir le gain de léthargie Δu pour passer de l'énergie E_1 à E_2 par [67]:

$$\Delta u = \ln \frac{E_1}{E_2} \quad (4.12)$$

On montre alors que le gain moyen de léthargie par choc, noté ξ , en supposant une énergie équiprobable des neutrons entre les chocs, ne depend que du paramètre de collision α , et par conséquent du nombre de masse du milieu ralentisseur :

$$\xi = 1 + \frac{\alpha}{1 - \alpha} \ln \alpha \quad (4.13)$$

Il est alors intéressant de définir une grandeur globale qui permette de synthétiser les différents paramètres du ralentissement. Il s'agit de la densité de neutrons qui passent par unité de temps par l'énergie E , notée $q(E)$:

$$q(E) = \phi(E)E\xi\Sigma_s \quad (4.14)$$

avec :

- $q(E)$ la densité de neutrons ($\text{n}/(\text{cm}^3.\text{s})$),
- $\phi(E)$ le flux de neutrons par unité d'énergie ($\text{n}/(\text{cm}^2.\text{s.MeV})$),
- E l'énergie du neutron (MeV),
- ξ le paramètre de ralentissement,
- Σ_s la section efficace macroscopique de diffusion (cm^{-1}).

Le tableau 4.3 compare les principaux paramètres de ralentissement pour le nickel et le plomb. Les valeurs de Σ_s sont obtenues sur l'intervalle entre 0.01 eV et 1 keV.

Elément	Ni naturel	Pb naturel
\bar{A}	58.2	207.2
α	0.933	0.981
ξ	0.0339	0.00962
Σ_s (cm^{-1})	1.68	0.362
λ_s (cm)	0.59	2.76

TAB. 4.3 – *Principaux paramètres du ralentissement pour le nickel et le plomb d'après la référence [68].*

Le libre parcours moyen de diffusion va nous permettre de déterminer la géométrie adéquate pour la configuration intérieure des hexagones. Deux possibilités sont alors envisageables :

- des assemblages avec des crayons
- des assemblages pleins.

Le libre parcours moyen d'un neutron dans le nickel est d'environ 6 mm (voir le tableau 4.3) ce qui nous fixe un ordre de grandeur du diamètre minimal d'un crayon. En deçà, la probabilité d'interagir au sein du crayon va décroître rapidement. Nous allons évaluer ces différentes configurations possibles sur les performances de transmutation en fonction de la dilution du ^{99}Tc .

4.2.3 Configuration sans crayon

En premier lieu, nous avons choisi de considérer des tubes hexagonaux pleins (sans crayon) constitués d'un cylindre de 5.4 cm de rayon gainé d'acier inclus dans un tube hexagonal. Ce cylindre est rempli de nickel naturel dans lequel se trouve dilué ^{99}Tc et est compris à l'intérieur d'un tube hexagonal. Une circulation d'hélium est présente entre le cylindre et l'hexagone. Nous avons étudié l'influence de la dilution sur les performances de transmutation du ^{99}Tc , à savoir

la demi-vie effective (figure 4.5), les masses transmuteses (figure 4.6) et les sections efficaces moyennes. En effet, la dilution permet de limiter l'effet d'auto-absorption qui se caractérise par une dépression du flux au niveau des résonances maximales. Ce phénomène induit une répartition inégale de la transmutation au sein du crayon et engendre donc une détérioration des performances de transmutation.

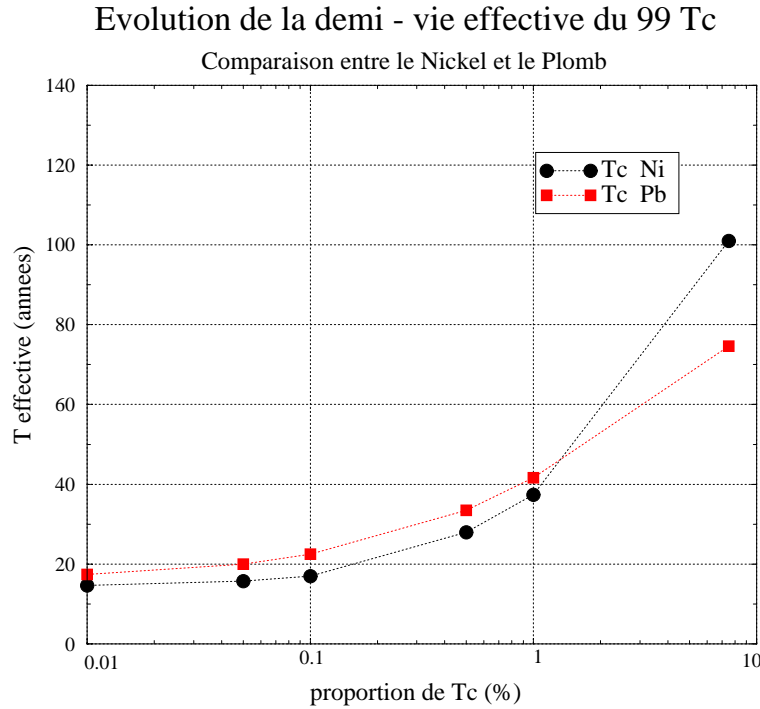


FIG. 4.5 – Influence de la dilution sur la demi-vie effective du ^{99}Tc dans un assemblage de nickel et dans un assemblage de plomb.

Il apparaît un effet particulièrement marqué de la dilution sur les performances de la transmutation. Nous constatons une amélioration notable de la demi-vie effective avec une valeur asymptotique inférieure à 15 ans pour une proportion de ^{99}Tc inférieure à 0.1 % dans le nickel (voir figure 4.5). Dans une matrice en plomb, les résultats sont équivalents ; le plomb est favorable pour une proportion de ^{99}Tc importante et devient moins performant que le nickel pour des proportions de ^{99}Tc inférieures au pourcent, comme le confirme les valeurs des sections efficaces moyennes de capture (n,γ) du ^{99}Tc données sur la figure 4.7.

On en déduit que sur des périodes inférieures à 10 ans, la consommation du ^{99}Tc peut être considérée linéaire ce qui est confirmé par l'évolution temporelle des masses de ^{99}Tc et de ^{100}Ru données pour une proportion de ^{99}Tc de 0.1 % dans le nickel sur la figure 4.8. Le taux de transmutation va diminuer avec la création de ^{100}Ru , dont la section efficace moyenne est d'environ 0.4 barn et qui va capturer une partie des neutrons pour former l'isotope ^{101}Ru stable. Mais cette section efficace moyenne de capture du ^{100}Ru est faible devant celle du ^{99}Tc

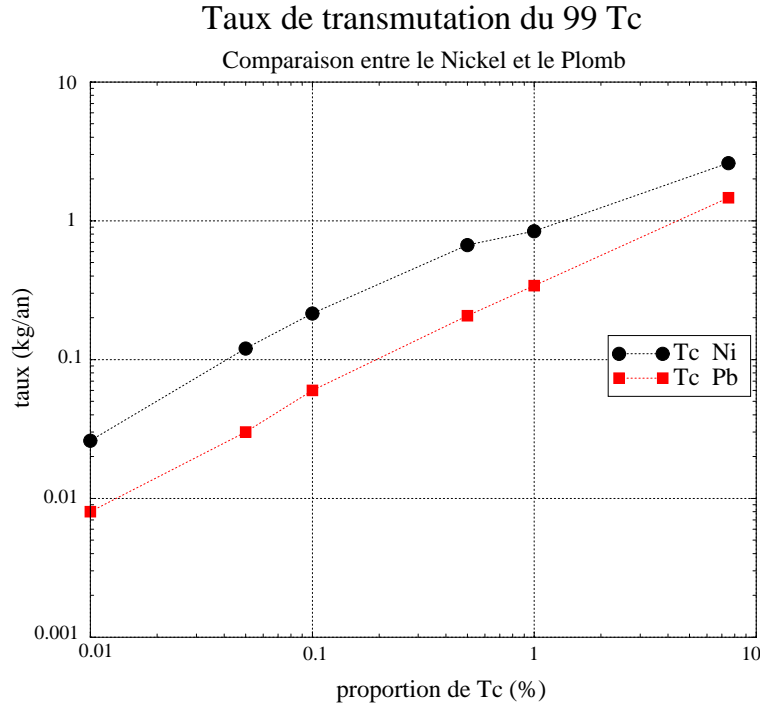


FIG. 4.6 – Evolution du taux de transmutation en fonction de la proportion de ^{99}Tc dans le nickel et dans le plomb.

et l'influence du ^{100}Ru est négligeable comme l'atteste l'évolution linéaire de la consommation du ^{99}Tc .

Par ailleurs, l'effet de ralentissement dans le réflecteur en nickel est particulièrement efficace comme le montre la comparaison entre le spectre énergétique des neutrons dans le combustible et dans les assemblages de nickel présentée sur la figure 4.9.

L'effet de l'auto-absorption sur la variation de la demi-vie effective en fonction de la proportion de ^{99}Tc au sein du nickel est particulièrement visible sur le spectre énergétique des neutrons. Une comparaison entre les spectres dans les assemblages de nickel pour des proportions de 5, 0.5 et 0.01 % de ^{99}Tc est donnée sur la figure 4.10. Ainsi, au niveau de la résonance à 5.58 eV, nous constatons une dépression du flux de neutrons très marquée pour les proportions de 5 et 0.5 % de ^{99}Tc , conséquence de la capture massive des neutrons par le ^{99}Tc à cette énergie. De plus, la pénétration des neutrons dans l'assemblage est réduite, ce qui induit une répartition non uniforme de la transmutation, avec une prédominance de la périphérie. Cette discontinuité du spectre disparaît lorsque la proportion de ^{99}Tc diminue au sein de l'assemblage. Par contre, comme le taux de transmutation diminue avec la proportion de ^{99}Tc , un compromis doit être trouvé entre la demi-vie effective et le taux de transmutation. Une demi-vie effective la plus courte possible n'est pas le critère déterminant. En effet, un critère qui semble plus pertinent est la comparaison entre la production de ^{99}Tc dans le cœur via la fission du combustible et sa

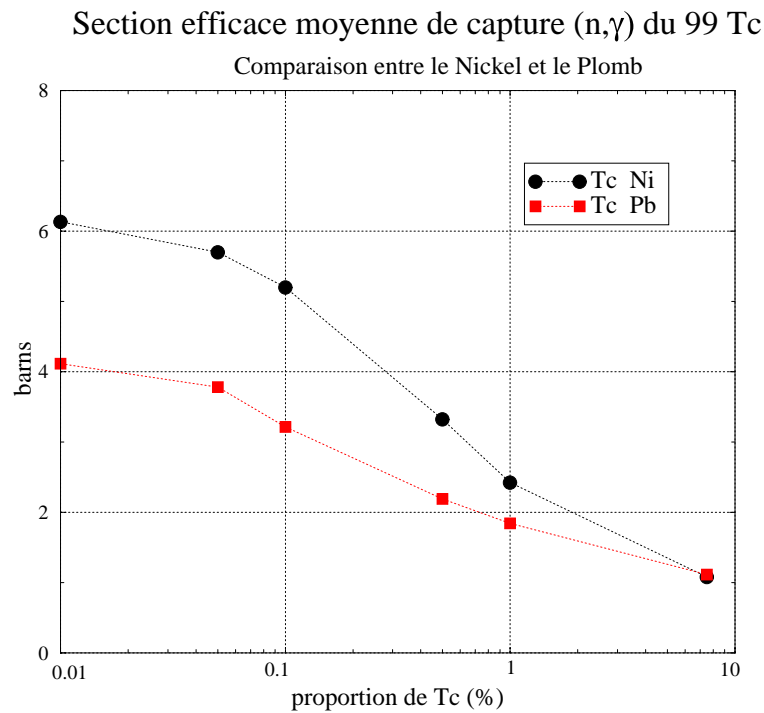


FIG. 4.7 – Evolution de la section efficace moyenne de capture du ^{99}Tc dans les assemblages dédiés avec du nickel et du plomb.

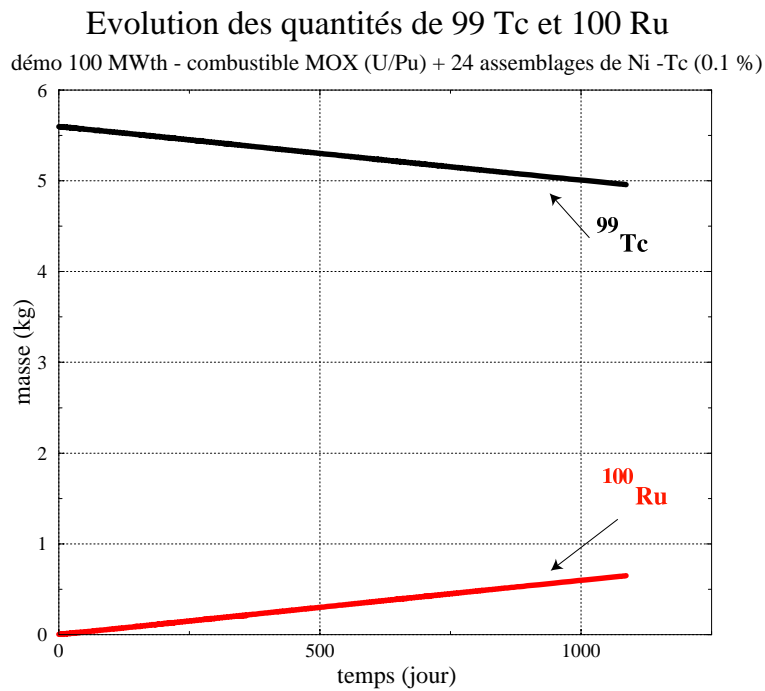


FIG. 4.8 – Evolution en fonction du temps des masses de ^{99}Tc et de ^{100}Ru pour une proportion de 0.1 % de ^{99}Tc dans les 24 assemblages de nickel.

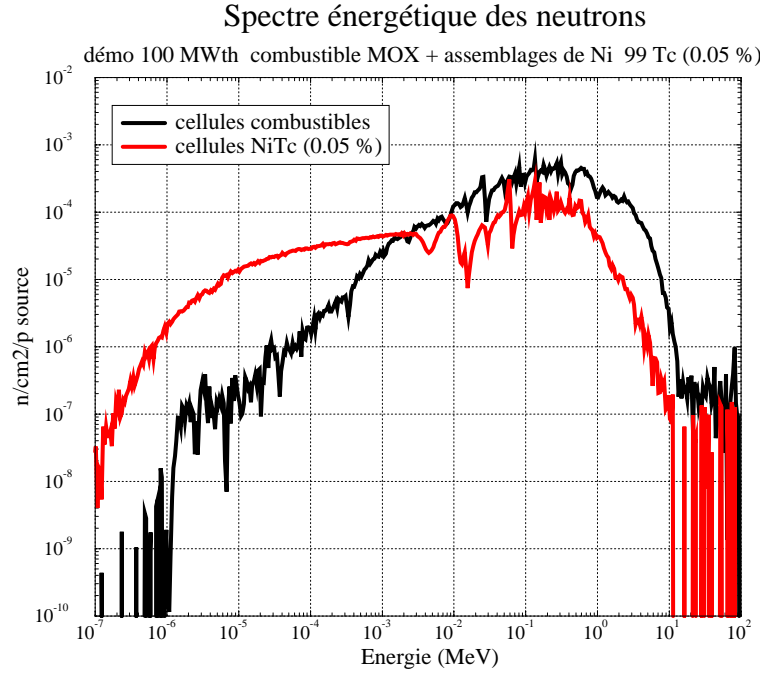


FIG. 4.9 – Comparaison du spectre énergétique des neutrons dans le combustible et dans un assemblage réflecteur en nickel avec une proportion de 0.05 % de ⁹⁹Tc.

consommation par transmutation dans le réflecteur.

4.2.4 Configuration avec crayons

Nous considérons ici un assemblage du même type que les assemblages combustibles, les crayons de combustible étant remplacés par du nickel naturel dans lequel le ⁹⁹Tc métallique est dilué. Les fils entre les crayons sont également constitués à base de nickel et la proportion d'hélium à l'intérieur de l'assemblage n'est plus que de 30 % puisque la puissance dégagée est très faible. Tout d'abord, nous avons évalué l'influence du rayon des crayons (aiguilles), en augmentant leur nombre au sein de l'assemblage, sur les performances de la transmutation pour une proportion de ⁹⁹Tc de 1 %. Les caractéristiques des crayons sont données dans le tableau 4.4.

L'influence du rayon des crayons est sensible mais cependant négligeable devant l'effet de la dilution. En effet le tableau 4.5 donne les résultats en fonction du nombre de couches de crayons, que l'on peut comparer avec la configuration sans crayon. La configuration sans crayon est la plus efficace puisqu'elle minimise la masse de ⁹⁹Tc nécessaire pour des performances de transmutation identiques dues à une meilleure diffusion des neutrons. L'assemblage plein permet un gain de 25 % sur la masse de ⁹⁹Tc en réduisant l'effet d'auto-absorption. D'autre part, l'augmentation du nombre de crayons entraîne une complication de l'assemblage et de sa fabrication ainsi qu'une

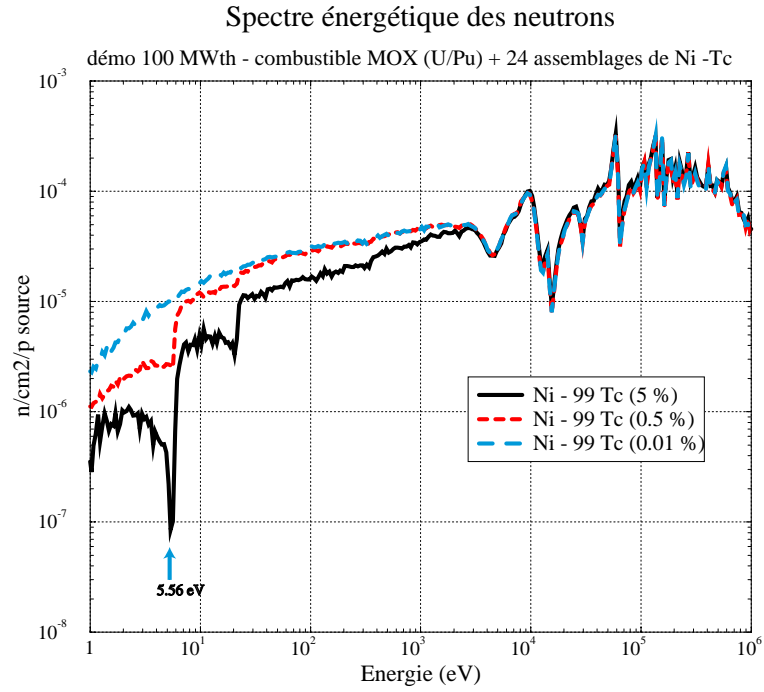


FIG. 4.10 – *Effet d’auto-absorption : influence de la proportion de ^{99}Tc sur le spectre énergétique des neutrons dans un assemblage de nickel.*

Nombre de couches de crayons	5	6	8
Nombre de crayons	64	91	169
Proportion d’hélium (%)	30.	30.	30.
Rayon du crayon (cm)	0.699	0.572	0.419
Epaisseur de la gaine (cm)	0.050	0.050	0.050
Rayon des pastilles $^{99}\text{Tc}(1\ \%)$ -Ni (cm)	0.649	0.522	0.369
Rayon d’un fil (cm)	0.093	0.078	0.058

TAB. 4.4 – *Caractéristiques des assemblages hexagonaux pour un pas de 13.93 cm envisagés pour la transmutation du ^{99}Tc dans du nickel.*

réduction de sa rigidité. Des solutions ont été développées pour limiter l'effet d'auto-protection dans les crayons en réalisant des anneaux ou des fils de ^{99}Tc au sein des crayons [69].

Nombre de couches de crayons	assemblage plein	5	6	8
Masse de ^{99}Tc /assemblage (kg)	1.56	2.05	1.98	1.84
Demi-vie effective (années)	37.4	37.7	37.5	37.3
Taux de transmutation (kg/an)	0.84	0.89	0.88	0.83
$\sigma(n,\gamma)$ (barns)	2.42	2.43	2.44	2.45

TAB. 4.5 – *Comparaison des performances de la transmutation d'une proportion de 1 % de ^{99}Tc au sein d'une matrice en nickel naturel à l'instant initial pour différents rayons de crayons avec une configuration sans crayon dans 24 assemblages dédiés.*

4.2.5 Influence sur le k_{eff}

Après avoir déterminé la configuration optimale pour réaliser la transmutation du ^{99}Tc , à savoir la position la plus favorable dans le réflecteur et des assemblages sans crayon, il est essentiel de connaître l'influence de nos 24 assemblages dédiés sur le k_{eff} du cœur en fonction de la proportion de ^{99}Tc . La figure 4.11, représentant l'évolution du k_{eff} en fonction de la dilution à l'instant initial, nous indique que pour les concentrations envisagées et le nombre d'assemblages dédiés considérés, l'influence du ^{99}Tc sur le cœur est négligeable et ne modifie pas les performances du réflecteur. C'est donc bien essentiellement des neutrons non utilisés pour les réactions de fission qui engendrent la transmutation du ^{99}Tc .

4.2.6 Détermination de l'équilibre

Le critère qui nous a semblé le plus judicieux est l'obtention d'un équilibre entre la production de ^{99}Tc par la fission du combustible dans le cœur et sa transmutation au sein du réflecteur. Cet équilibre, déterminé dans le cadre du démonstrateur, va nous permettre de déterminer la quantité de ^{99}Tc à incorporer et donc sa proportion dans le nickel. A puissance thermique constante, l'évolution du taux de production du ^{99}Tc dans le cœur est linéaire puisque le taux de fission dans le cœur est constant. Le taux de production pour notre combustible MOX (U/Pu) est de 0.91 kg/an, ce qui nous fixe le taux de transmutation à obtenir pour atteindre l'équilibre entre production et consommation. D'après la figure 4.12, en supposant le taux de transmutation constant au cours du temps, il s'avère que la proportion de ^{99}Tc au sein du nickel nécessaire à l'équilibre entre production et consommation est de 1 %. Pour assurer la transmutation d'un stock de ^{99}Tc , il faut donc se placer à une concentration supérieure. La masse de ^{99}Tc comprise dans les 24 assemblages avec une proportion de 1 % est alors de 37.5 kg qui correspondent à environ 40 ans de fonctionnement du démonstrateur. Cette démarche reste pédagogique et

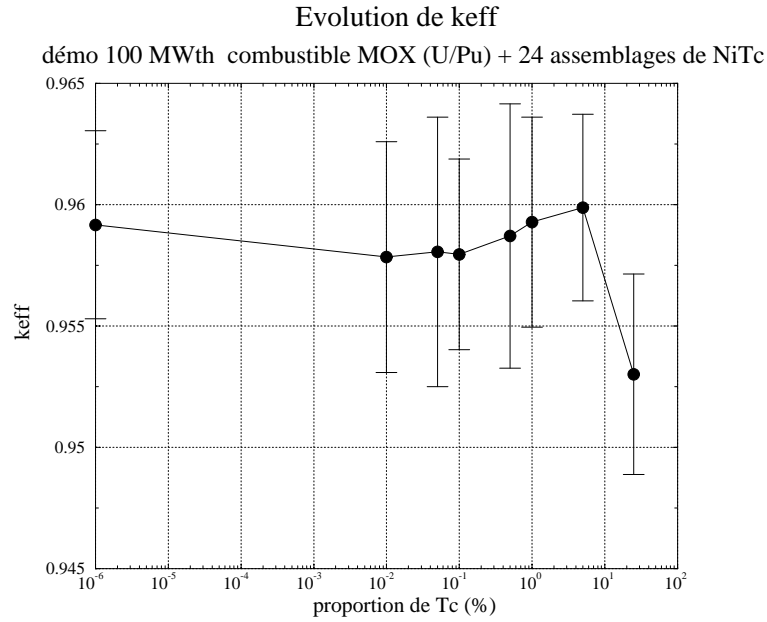


FIG. 4.11 – Valeur de k_{eff} au d marrage en fonction de la proportion de ^{99}Tc dans les 24 assemblages d di s.

l'extrapolation vers un incin rateur semble difficile. Il n'en demeure pas moins qu'un taux de transmutation suffisamment  lev  doit  tre obtenu pour se placer au-del  du point d' quilibre entre la production dans le combustible et la transmutation dans le r flecteur pour assurer la consommation de l'inventaire provenant d'autres installations productrices d' nergie ce qui semble r alisable.

Evolution du taux de transmutation du ^{99}Tc

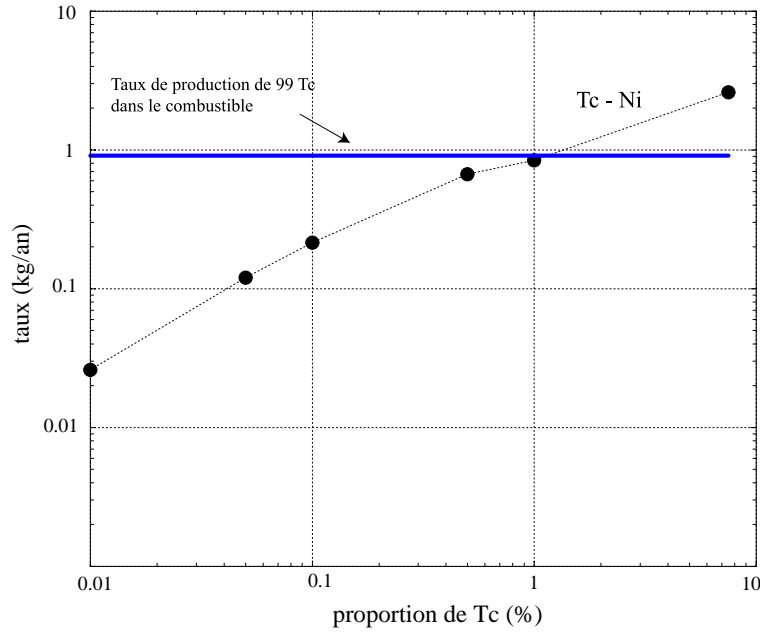


FIG. 4.12 – Evolution du taux de transmutation dans le nickel comparée avec le taux de production dans le combustible du ^{99}Tc .

4.3 Transmutation de l'iode ^{129}I

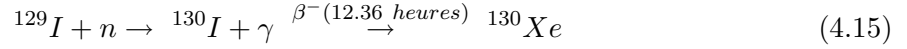
4.3.1 Diffusion de l'iode ^{129}I

Pour un combustible d'oxyde d'uranium enrichi à 3.5 % irradié au taux de 33 GWj/t d'après [17], l'iode est produit principalement sous la forme de trois isotopes, l' ^{129}I de période radioactive de 15,7 millions d'années, l' ^{131}I de période radioactive de 8 jours et l' ^{127}I stable. Une fois que l' ^{131}I a décrépu, l' ^{129}I et l' ^{127}I représentent respectivement 90 % et 10 % de la composition de l'iode. La quantité d'iode produite est de l'ordre de 170 grammes par tonne de combustible déchargé ce qui constitue l'un des produits de fission les plus abondants. L'iode étant très volatil, il est l'un des premiers radioéléments à s'échapper en cas de rupture de gaine. Dans la phase de retraitement avec le procédé PUREX [17], l'iode se libère par contact avec l'acide nitrique à ébullition. Suite à l'oxydation de l'iodure de sodium, l'iode se dégage sous forme de gaz. Il est alors piégé sur un support de nitrate d'argent. Néanmoins, actuellement, 95 % de l'iode issu du retraitement est rejeté dans la mer et l'atmosphère. Quant aux filtres, ils sont recueillis en tant que déchets technologiques et entreposés. Des études sont actuellement menées afin d'améliorer le piégeage de l'iode lors du retraitement du combustible et de le conditionner sous la forme d'une matrice stable à long terme. L'iode possède une activité faible mais il est actif sur une longue période (16 millions d'années) et migre facilement dans l'environnement et, comme le technétium, se

concentre volontiers sur un organe vital (la thyroïde). Dans l'optique d'un stockage géologique, ^{129}I est donc un des principaux radionucléides potentiellement radiotoxique [70].

4.3.2 Transmutation de ^{129}I

La transmutation de ^{129}I , comme pour le ^{99}Tc , repose sur une réaction de capture neutronique qui aboutit à la formation de ^{130}I qui décroît en quelques heures par radioactivité β^- vers le ^{130}Xe stable.



Contrairement au ^{99}Tc , ^{129}I présente une section efficace de capture (n, γ) dont les maxima des résonances, de l'ordre de quelques centaines de barns, sont inférieurs à ceux du ^{99}Tc comme le confirme la figure 4.13.

Section efficace de capture de ^{129}I

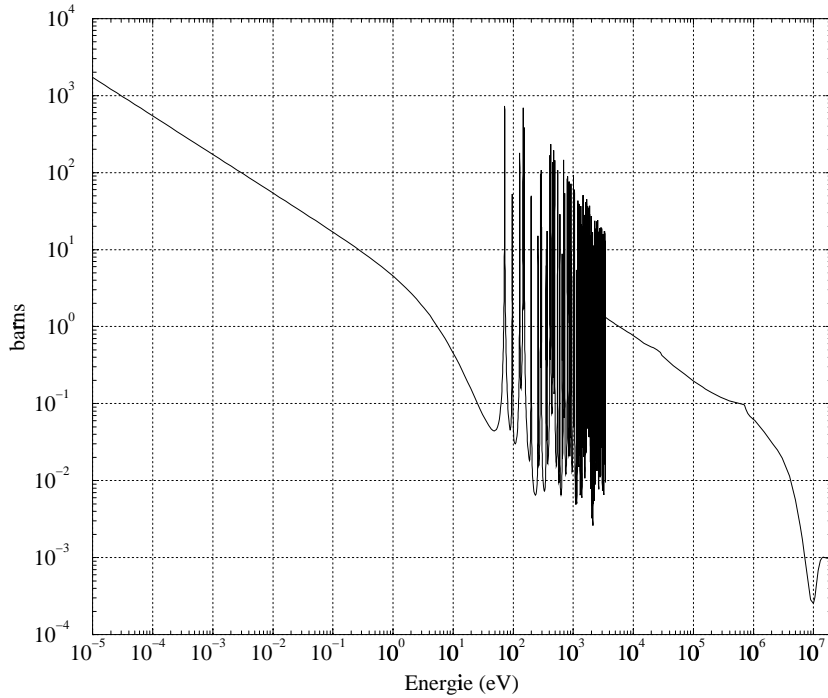
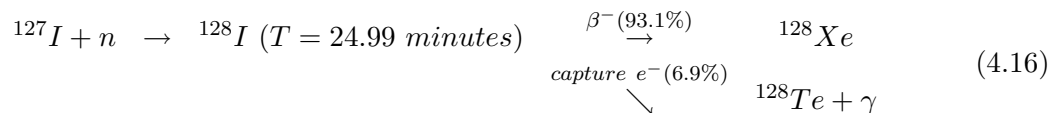


FIG. 4.13 – Section efficace de capture (n, γ) de ^{129}I issue de la base JEF-2.2.

La présence de 10 % d' ^{127}I va engendrer par capture (n, γ) la formation de ^{128}Xe stable et d'une très faible proportion de ^{128}Te stable également suivant les processus suivants :



4.3.3 Assemblages de $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$

Le choix d'une matrice pour l'iode est délicat puisqu'il n'y a pas actuellement de choix précis sur la forme chimique à adopter. Nous avons considéré sa forme précipitée d'iodate de baryum de formule chimique $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$ donnée dans la référence [71] car elle présente une stabilité chimique importante jusqu'à 700°C et est insoluble. Ce dernier point est important pour réaliser un stockage en l'état de l'assemblage une fois le niveau de transmutation souhaité atteint. Il existe d'autres formes chimiques envisageables pour réaliser des cibles en vue de la transmutation de l'iode tels que des composés chimiques à base de cérium (CeI_3) ou de magnésium (MgI_2) ainsi que des composés à base de métaux comme l'iodure de sodium (NaI) ou l'iodure de plomb (PbI) [72]. La formation du gaz rare que représente le ^{130}Xe , risque de provoquer des problèmes de gonflement et de mise sous pression des gaines et structures d'où la nécessité de prévoir des volumes importants d'expansion des gaz. La configuration du cœur est semblable à celle utilisée pour la transmutation du ^{99}Tc .

Optimum du taux de capture

Le maximum du taux de réaction de capture pour l' ^{129}I dans le réflecteur est situé à la même distance du cœur que dans le cas du ^{99}Tc , par contre la valeur de ce maximum est environ 20 fois plus faible. De plus, ce maximum est moins prononcé et le taux de réaction présente un niveau quasi constant sur les 35 premiers centimètres du réflecteur. Cette différence provient d'une section efficace de capture de l' ^{129}I nettement inférieure à celle du ^{99}Tc puisque la valeur du flux reste identique comme le confirme la section efficace moyenne de capture de l' ^{129}I au sein du réflecteur sur la figure 4.15. A la position optimale, la section efficace moyenne de l' ^{129}I n'est que de l'ordre de 1.5 barns (à comparer à 0.3 barn dans le combustible) contre près de 4 barns pour l' ^{127}I pour une proportion de $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$ de 0.0055 %. Le baryum présente une section efficace moyenne de capture de l'ordre de 0.2 barn qui représente un peu plus de 10 % de la section efficace moyenne de l' ^{129}I et son effet reste donc relativement négligeable. Si l'on tient compte de l'ensemble de ces captures parasites sur l' ^{127}I et le baryum, il faut 1,45 neutron pour transmuter un noyau d' ^{129}I puisque 0.38 neutron est capturé par l' ^{127}I et 0.07 neutron par le baryum pour un neutron capturé par l' ^{129}I .

En résumé, nous avons donc positionné nos assemblages dédiés dans le réflecteur à la même position que précédemment et nous avons conservé la configuration sans crayon composée de nickel dans lequel l'iode est dilué sous forme d'iodate de baryum.

Résultats

Comme dans le cas du technétium, l'effet de la dilution est notable sur les performances de la transmutation même si les variations induites restent faibles. Du fait d'une section efficace

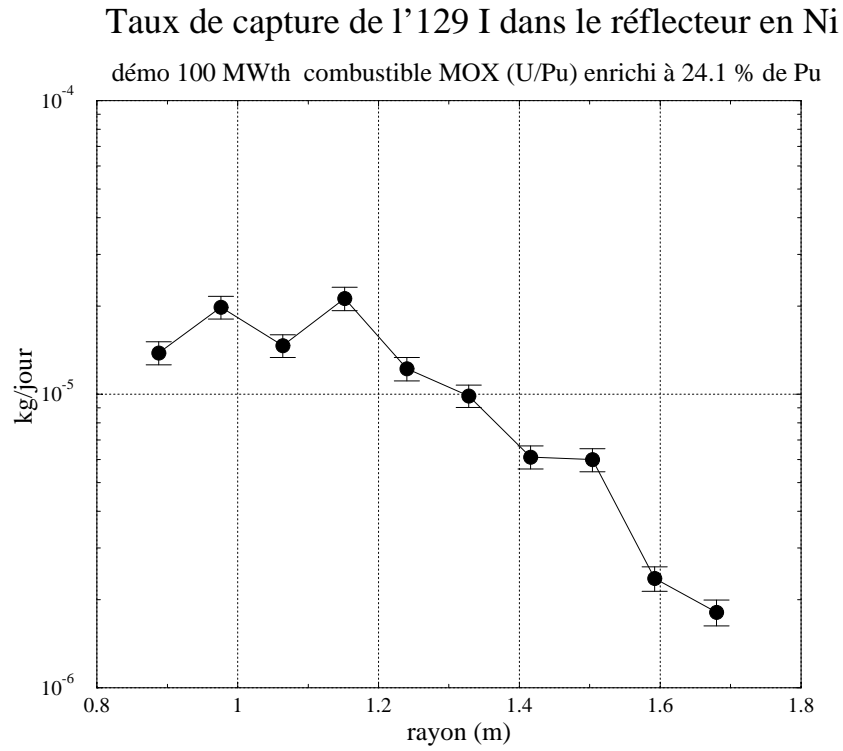


FIG. 4.14 – Evolution du taux de capture de ^{129}I dans le réflecteur pour une proportion molaire de 0.0055 % de $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$ dans le nickel.

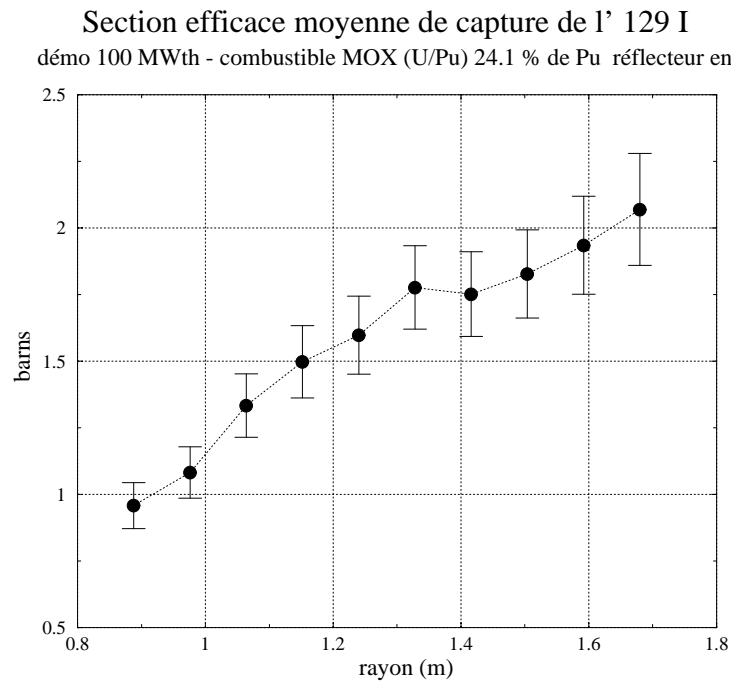


FIG. 4.15 – Evolution de la section efficace moyenne de ^{129}I au sein du réflecteur pour une proportion molaire de 0.0055 % de $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$ dans le nickel.

de capture (n,γ) plus faible de l' ^{129}I (figure 4.15 a), la demi-vie effective asymptotique est de l'ordre de 60 ans (figure 4.16 b).

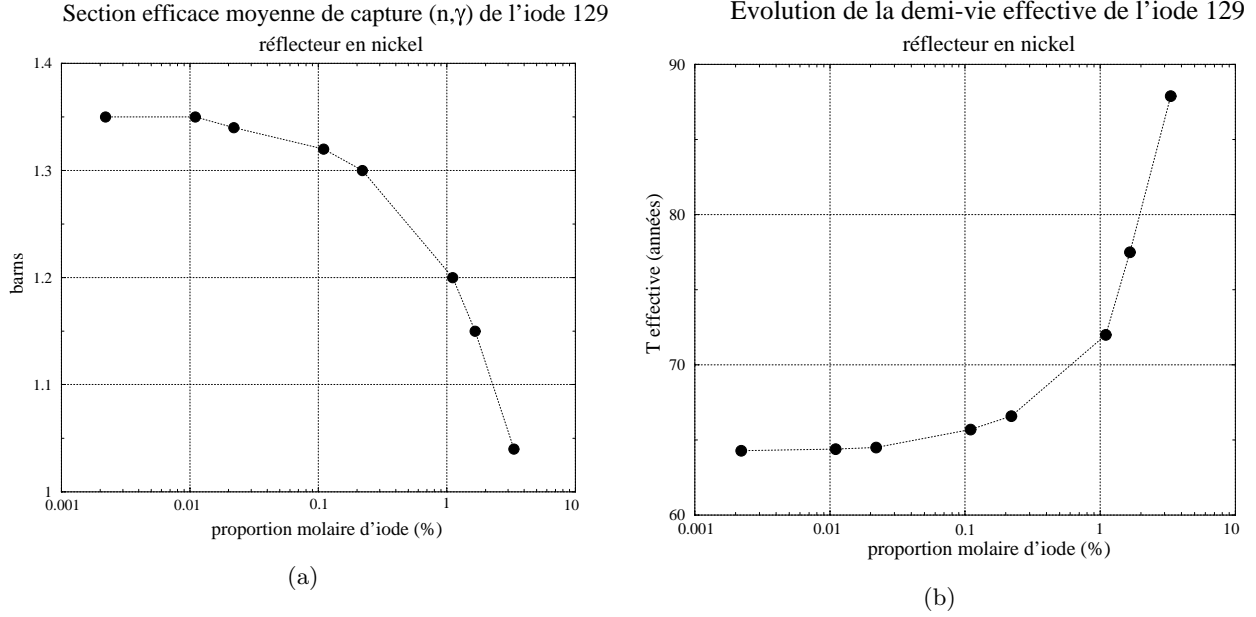


FIG. 4.16 – (a) Evolution de la section efficace moyenne et (b) de la demi-vie effective de l' ^{129}I en fonction de la proportion molaire d'iode dans les 24 assemblages dédiés.

Comme précédemment, nous avons déterminé le point d'équilibre entre la quantité d' ^{129}I produite dans le combustible et la quantité consommée dans les assemblages dédiés placés dans le réflecteur. Le taux de production de ^{129}I dans le combustible est de 0.39 kg/an pour une puissance de 100 MWth. La figure 4.17 a) compare le taux transmutation de ^{129}I avec son taux de production dans le cœur. L'état d'équilibre est atteint pour une proportion molaire d'iode de 0.66 % dans l'assemblage de nickel-Ba(IO_3)₂. Cette proportion correspond à une masse de 38 kg d' ^{129}I dans les assemblages dédiés. Cette masse de 38 kg d' ^{129}I , nécessaire pour atteindre l'équilibre, correspond à la production de presque 100 ans de fonctionnement du démonstrateur, ce qui donne un ordre de grandeur des temps mis en jeu pour la transmutation de ^{129}I , même si ce résultat est difficilement extrapolable à un réacteur de grandes dimensions.

Evolution du taux de transmutation de l'iode 129

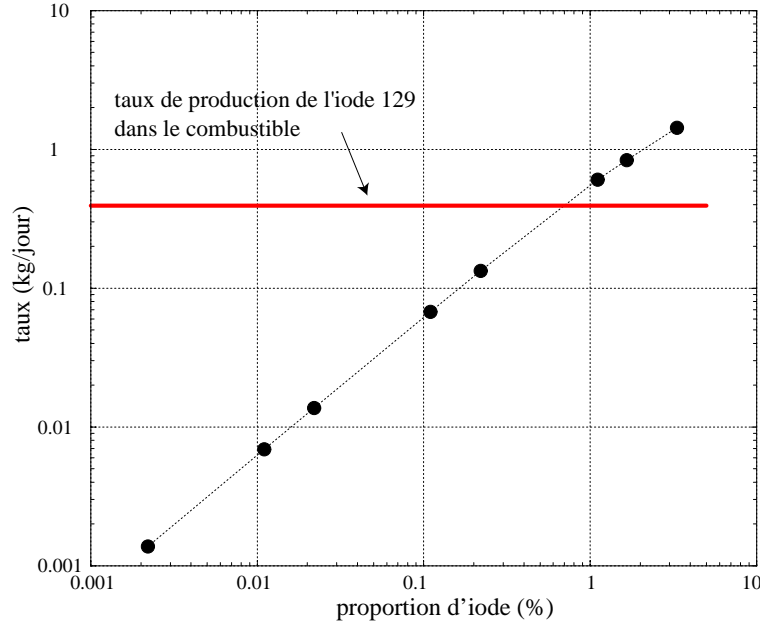


FIG. 4.17 – Comparaison entre le taux de production dans le combustible et de transmutation de ^{129}I dans le réflecteur dans les 24 assemblages dédiés en fonction de la proportion molaire d'iode.

4.4 Conclusions

Au cours de ce chapitre, nous avons envisagé dans le cadre du démonstrateur les possibilités de transmutation du ^{99}Tc et de ^{129}I au sein d'un réflecteur en nickel qui présente des caractéristiques neutroniques particulièrement intéressantes du fait d'une section efficace de diffusion importante. Il apparaît alors une position optimale dans le réflecteur située à environ trente centimètres du combustible qui maximise les taux de capture des neutrons dans le ^{99}Tc et ^{129}I . Des assemblages dédiés ont été incorporés à ces positions et l'influence de la géométrie de l'assemblage a été évaluée. Il ressort que des assemblages pleins dans lesquels sont dilués les éléments à transmuter limitent l'effet d'auto-protection présent au sein du crayon. D'autre part, nous constatons que la demi-vie effective et le taux de transmutation sont fortement dépendants de la dilution de l'élément à transmuter en relation avec l'effet d'auto-absorption des résonances. Cet effet est fortement marqué pour le ^{99}Tc . Les demi-vies effectives minimales atteintes dans le cas du démonstrateur, pour le ^{99}Tc et ^{129}I , sont respectivement de 15 et 64 ans lorsque la dilution devient importante. La différence essentielle entre le ^{99}Tc et ^{129}I provient d'une section efficace de capture moindre pour ^{129}I ainsi que de la présence pour 10 % d' ^{127}I dont la section efficace de capture est élevée. Un compromis doit être trouvé entre une demi-vie effective la plus courte possible et le taux de transmutation. Celui-ci doit nécessairement être au moins

égal au taux de production dans le combustible de l'élément à transmuter pour atteindre un équilibre. Dans un but pédagogique, nous avons déterminé les concentrations d'équilibre entre le taux de production et le taux de transmutation pour le démonstrateur. L'état d'équilibre est atteint pour une proportion molaire de 1 % de ^{99}Tc et de 0.66 % d'iode dans l'assemblage dédié. Les demi-vies associées sont alors de 37 ans pour le ^{99}Tc et de 70 ans pour l' ^{129}I . Même si ces résultats sont difficilement extrapolables à un incinérateur de grandes dimensions, ils donnent l'ordre de grandeur des constantes de temps nécessaires à la transmutation de ces deux produits de fission. L'extrapolation de ces résultats est possible à deux conditions à savoir des niveaux de flux équivalents dans le réflecteur pour le démonstrateur et l'incinérateur de puissance ainsi qu'un spectre énergétique des neutrons équivalent.

Chapitre 5

Du démonstrateur vers un réacteur de puissance

5.1 Critères physiques

Dans ce chapitre, nous chercherons à quantifier les critères physiques qui qualifient le caractère représentatif d'un démonstrateur pour un réacteur de puissance, notamment la forme du flux et les facteurs de forme. En effet, les performances d'incinération des actinides mineurs et de transmutation des produits de fission sont conditionnées par les niveaux de flux dans le cœur et dans le réflecteur pour un même type de spectre énergétique des neutrons. Par ailleurs, nous évaluerons l'influence du niveau de sous-criticité.

5.1.1 Solutions de l'équation de la diffusion pour un milieu sous-critique

Nous allons évaluer la distribution spatiale du flux dans un réacteur de taille finie avec une source ponctuelle de neutrons. Dans un premier temps, nous allons nous placer dans le cas simplifié de l'équation de la diffusion, en supposant des neutrons mono-cinétiques. Cette hypothèse très simplificatrice va nous permettre une première approche de la distribution spatiale du flux dans un système sous-critique avant la mise en œuvre de simulations Monte Carlo détaillées.

L'équation de la diffusion dans un milieu homogène à un groupe d'énergie est donnée par [53] [54] [55] :

$$D\Delta\phi(\vec{r},v,t) - \Sigma^{abs}\phi(\vec{r},v,t) + S(\vec{r},v,t) = \frac{1}{v} \frac{d\phi(\vec{r},v,t)}{dt} \quad (5.1)$$

avec :

D : le coefficient de diffusion (cm) ($D \simeq \frac{\lambda_{tr}}{3}$ où λ_{tr} est le libre parcours moyen de transport) dans le milieu considéré,

Σ^{abs} : la section efficace macroscopique d'absorption totale du milieu (cm^{-1}),

$S(\vec{r}, v, t)$: une densité de source (n/(cm³.s)).

En régime permanent, on obtient :

$$D\Delta\phi(\vec{r}) - \Sigma^{abs}\phi(\vec{r}) + S(\vec{r}) = 0 \quad (5.2)$$

Dans un milieu multiplicateur avec source externe $S_{ext}(\vec{r}_0, v)$ à la position \vec{r}_0 , on pose :

$$S(\vec{r}, v) = \nu\Sigma^{fiss}\phi(\vec{r}, v) + S_{ext}(\vec{r}_0, v) \quad (5.3)$$

$$S(\vec{r}, v) = k_\infty\Sigma^{abs}\phi(\vec{r}, v) + S_{ext}(\vec{r}_0, v) \quad (5.4)$$

L'introduction des expressions de la source 5.4 et de k_∞ , défini par la relation 1.9, dans l'équation 5.2 donne :

$$\Delta\phi(\vec{r}) + \frac{k_\infty - 1}{L^2}\phi(\vec{r}) + \frac{S_{ext}(\vec{r}_0)}{D} = 0 \quad (5.5)$$

avec :

$$L^2 = \frac{D}{\Sigma^{abs}} \quad (5.6)$$

La résolution de cette équation nous donne accès à la forme du flux dans le réacteur.

Dans le cas d'un réacteur hybride, si la sous-criticité du cœur est importante, la valeur de k_∞ peut devenir proche de 1, voire inférieure à 1.

La source externe $S_{ext}(\vec{r}_0)$ supposée ponctuelle, isotrope et constante est placée à l'origine (centre du cœur).

La solution générale de 5.6 s'écrit en coordonnées cartésiennes :

$$\phi(\vec{r}) = \sum_{i=1}^{\infty} \sum_{j=1}^{+\infty} \sum_{k=1}^{\infty} A_{ijk} \cos((2i+1)\frac{\pi}{a}x) \cos((2j+1)\frac{\pi}{b}y) \cos((2k+1)\frac{\pi}{c}z) \quad (5.7)$$

- avec $\vec{r} = (x, y, z)$ et $\vec{r}_0 = (x_0, y_0, z_0)$,
- avec les conditions aux limites sur les surfaces, pour un parallélépipède de côtés (a,b,c) centré en (0,0,0) et la condition de source,
- et avec la distance extrapolée (c.a.d la distance à partir de laquelle le flux s'annule) confondu avec la limite géométrique du cœur.

On développe la source $S_{ext}(\vec{r})$ sous la forme :

$$S_{ext}(\vec{r}) = \sum_{i=1}^{\infty} \sum_{j=1}^{+\infty} \sum_{k=1}^{\infty} s_{ijk} \cos((2i+1)\frac{\pi}{a}x) \cos((2j+1)\frac{\pi}{b}y) \cos((2k+1)\frac{\pi}{c}z) \quad (5.8)$$

On reporte dans l'équation de la diffusion 5.6 pour obtenir les coefficients A_{ijk} :

$$A_{ijk} = \frac{\frac{s_{ijk}}{D}}{(2i+1)^2 \frac{\pi^2}{a^2} + (2j+1)^2 \frac{\pi^2}{b^2} + (2k+1)^2 \frac{\pi^2}{c^2} - \frac{k_\infty - 1}{L^2}} \quad (5.9)$$

Les constantes A_{ijk} définissent les différents modes du flux et sont déterminées par la condition de source [54] [53].

La solution existe pour des coefficients A_{ijk} positifs d'où la condition suivante :

$$\frac{k_\infty - 1}{L^2} < \frac{\pi^2}{a^2} + \frac{\pi^2}{b^2} + \frac{\pi^2}{c^2} \quad (5.10)$$

soit :

$$k_\infty < 1 + L^2 \left(\frac{\pi^2}{a^2} + \frac{\pi^2}{b^2} + \frac{\pi^2}{c^2} \right) \quad (5.11)$$

Cette dernière condition est vraie quelque soit k_∞ et donc notamment pour un réacteur sous-critique. Le flux est donc dépendant du k_∞ présent au dénominateur des coefficients A_{ijk} .

5.1.2 Facteur de forme

Outre les facteurs de multiplication k_{eff} et k_s , définis au chapitre 1, représentatifs du contrôle du réacteur et de la multiplication neutronique, nous nous sommes intéressés plus particulièrement aux facteurs de forme radial et axial pour quantifier l'influence du pic de puissance créé au centre du réacteur par la source de neutrons de spallation, ainsi qu'à la forme du flux [56].

Définition des facteurs de forme

Le facteur de forme radial est défini comme le rapport entre la puissance linéique maximale et la puissance linéique moyenne dans le disque horizontal médian du cœur. Dans un repère en coordonnées cylindriques, dont l'origine est au centre du cœur, on a :

$$F_{radial}(z = 0, r) = \frac{P_{max}}{P_{moy}} \quad (5.12)$$

De même, le facteur de forme axial est défini comme le rapport entre la puissance linéique maximale et la puissance linéique moyenne au niveau de la surface cylindrique verticale du cœur à rayon constant. Dans un repère en coordonnées cylindriques, dont l'origine est au centre du cœur, on définit :

$$F_{axial}(z, r = \text{constante}) = \frac{P_{max}}{P_{moy}} \quad (5.13)$$

On se placera à la limite entre le module de spallation et le cœur.

La puissance linéique est calculée pour chaque cellule combustible par :

$$P_{lin} = \frac{E_{déposée} N_s q}{L} \quad (5.14)$$

avec :

- P_{lin} la puissance linéique (W/cm),
- q le coefficient de conversion (J/MeV),
- L la longueur de la cellule (cm),
- $E_{déposée}$ l'énergie déposée dans la cellule (MeV/particule source),
- et N_s le nombre de neutrons source par seconde.

De même, la puissance volumique (W/cm³) est définie pour chaque cellule combustible comme :

$$P_{vol} = \frac{E_{déposée} N_s q}{V} \quad (5.15)$$

avec V le volume de la cellule (cm³).

Si les crayons ont des sections identiques, on a :

$$P_{vol} = \frac{P_{lin}}{S} \quad (5.16)$$

S étant la section du crayon (cm²).

Importance des facteurs de forme

Pour des impératifs de résistance mécanique en température, la puissance linéique maximale est fixée à une valeur limite en relation avec les possibilités d'évacuation de la puissance par le caloporteur qu'on ne doit pas dépasser. Comme, par ailleurs, la puissance moyenne est proportionnelle à la puissance extraite du réacteur, on voit que l'on a intérêt à ce que les facteurs de forme soient les plus petits possibles :

- d'une part, plus la puissance sera uniforme (à puissance maximale fixée), plus la température du fluide caloporteur sera homogène à la sortie du réacteur et meilleur sera le rendement thermodynamique de l'installation,
- d'autre part, un profil de puissance le plus homogène possible garantira un taux de combustion (burn-up) homogène dans l'ensemble du cœur.

En complément de ce dernier point, c'est la gestion du combustible qui dépend de la répartition du taux de combustion dans l'ensemble du cœur. Compte tenu du taux maximal admissible pour une pastille de combustible (50000 MWj/t pour un combustible UOX par exemple), le taux moyen (33000 MWj/t dans le cas d'un REP 900 MWé chargé en combustible UOX par exemple) dépend des facteurs de forme axial et radial. Les objectifs de la gestion du combustible sont en particulier :

- d'optimiser le taux d'épuisement avant la décharge de chaque région,

- d’assurer une distribution de puissance permettant le découplage des études thermohydraulique et neutronique.

En remarque, pour un réacteur à neutrons rapides (type Superphenix), les facteurs de forme sont de l’ordre de 1,5 à 1,7 [54].

5.1.3 Géométrie du cœur et méthode de calcul utilisée

Pour déterminer la représentativité du démonstrateur, nous avons simulé différents cœurs de dimensions croissantes. Dans tous les cas, nous avons repris la géométrie définie aux chapitres précédents et rappelée succinctement ci-dessous :

- un cœur orthocylindrique,
- des tubes hexagonaux en acier d’un pas de 13.93 cm dans lesquels sont présentes des aiguilles de combustible séparées par un fil d’acier,
- un pourcentage de caloporteur (He) à l’intérieur des tubes hexagonaux de 50 %,
- quatre couches de crayons dans un assemblage,
- un combustible de type MOX ($\text{UO}_2\text{-PuO}_2$) dont l’enrichissement en plutonium est variable avec une valeur limite fixée à 30 %,
- un réflecteur radial de un mètre d’épaisseur, constitué d’assemblages hexagonaux avec des aiguilles en acier, est placé en périphérie du cœur et les assemblages combustibles possèdent des réflecteurs axiaux,
- la puissance linéique maximale du combustible est fixée à 375 W/cm ce qui impose la puissance du réacteur,
- la valeur de k_{eff} est fixée à 0.975 en prenant comme paramètre l’enrichissement en plutonium,
- un faisceau constitué de protons d’une énergie de 1 GeV.

Par ailleurs, nous avons considéré les deux cibles, à savoir la cible de référence et la cible sans fenêtre de 58.cm et 33. cm de diamètre respectivement, décrites au chapitre 2.

La puissance totale est donnée par :

$$P_{tot} = \sum_{i=1}^{nb_{cellules}} P_{lin}^i L^i \quad (5.17)$$

où :

- $nb_{cellules}$ est le nombre total de cellules formant le cœur,
- P_{lin}^i est la puissance linéique de la cellule i, avec $P_{lin}^i \leq P_{lin}^{max}$, quelque soit i,
- et L^i la longueur de la cellule i.

De la relation (5.17), nous déduisons qu'un moyen simple d'augmenter la puissance totale à volume de cœur constant et à puissance linéique maximale fixée est d'augmenter le nombre de crayons (i.e d'augmenter le nombre de couches de crayons) à l'intérieur des tubes hexagonaux. Le passage de 4 à 5 couches de crayons conduit à un nombre de crayons dans les assemblages respectivement de 37 et 61. Avec 5 couches de crayons, on obtient presque un doublement de la puissance totale. Augmenter le nombre de crayons revient à accroître la surface d'échange thermique. En contre-partie, comme l'indique la relation (5.16), l'augmentation du nombre de crayons par assemblage, et donc une réduction de leur rayon (et de leur rigidité), va entraîner une augmentation de la puissance volumique dans le crayon à puissance linéique maximale fixée. Cela revient à augmenter le taux de combustion (burn-up) du combustible. Par ailleurs, le rayon du crayon ne doit pas être trop petit devant le libre parcours moyen d'un neutron dans le combustible.

5.1.4 Evolution des flux

Les flux étudiés sont les flux radiaux dans le plan médian du cœur et axiaux au centre du cœur obtenus pour les deux cibles. Ils sont donnés respectivement sur les figures 5.1 et 5.2 pour les différents cœurs envisagés.

Nous trouvons une évolution continue dans la forme des flux avec les dimensions du cœur ; d'une forme en "cosinus" pour les cœurs de petites dimensions, on passe progressivement à une forme en "exponentielle" pour les cœurs de grandes dimensions. La concentration en plutonium diminue pour obtenir le k_{eff} cherché lorsque la taille du cœur augmente. Elle passe de 24.1 % de plutonium pour un petit cœur de 0.85 m de rayon avec la cible de référence à 12.6 % de plutonium pour un cœur de dimensions importantes (2.16 m de rayon). Avec la cible de référence, le flux maximum est d'environ 1.10^{15} n.cm⁻².s⁻¹ pour un petit cœur (rayon du cœur de 0.85 m) et de 2.10^{15} n.cm⁻².s⁻¹ pour un cœur de taille importante (rayon du cœur de 2.16 m). Les valeurs maximales du flux avec la cible fontaine sont du même ordre de grandeur.

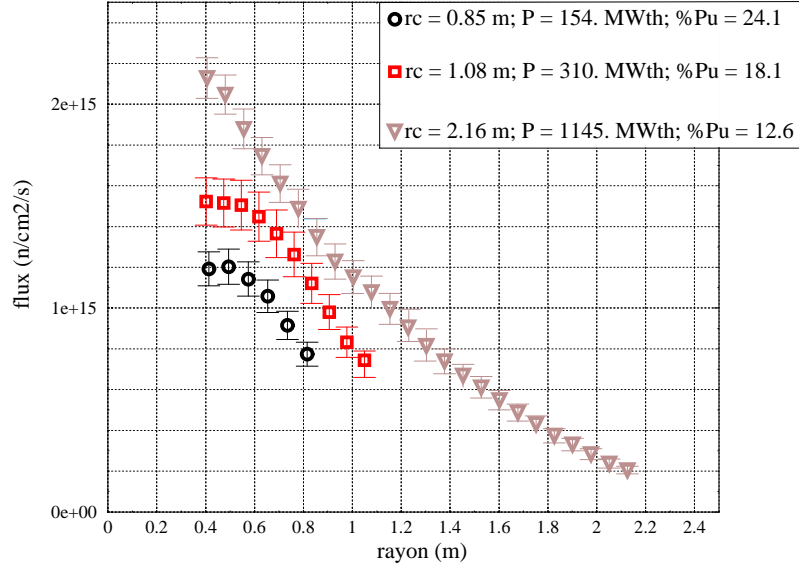
On a noté que la valeur maximale du flux augmente avec la taille. Une analyse qualitative à partir de la puissance est nécessaire. On rappelle ici, que la puissance du réacteur est donnée par :

$$P = \int_V \int_{E=0}^{+\infty} E_{fiss} \sigma_f(E) N(\vec{r}) \phi(\vec{r}, E) dE dV \quad (5.18)$$

En effet, le produit $\sigma_f(E) N(\vec{r}) \phi(\vec{r}, E)$ correspond à un taux de réaction (fissions/seconde) qui multiplié par l'énergie d'une fission donne la puissance à la position \vec{r} pour l'énergie E. L'intégration sur l'énergie et sur le volume (V) du cœur correspond à la puissance totale délivrée. Lorsque la densité de noyaux fissiles diminue à puissance linéique fixée, il en découle une augmentation de la valeur du flux.

Flux radial dans le combustible plan médian avec la cible de référence

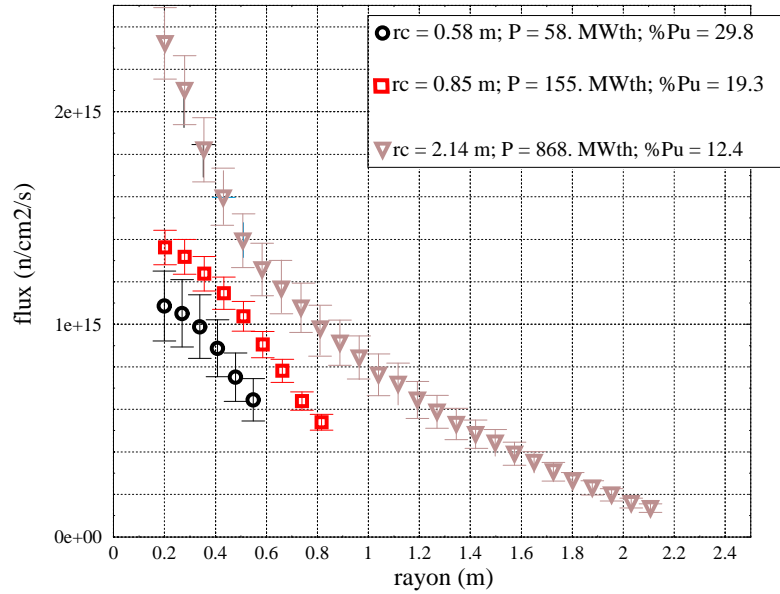
keff = 0.975 Plinéique max = 375 W/cm



(a)

Flux radial dans le combustible plan médian avec la cible fontaine

keff = 0.975 Plinéique max = 375 W/cm



(b)

FIG. 5.1 – Evolution du flux radial dans le plan médian en fonction du rayon du cœur pour la cible de référence (a) et la cible fontaine (b).

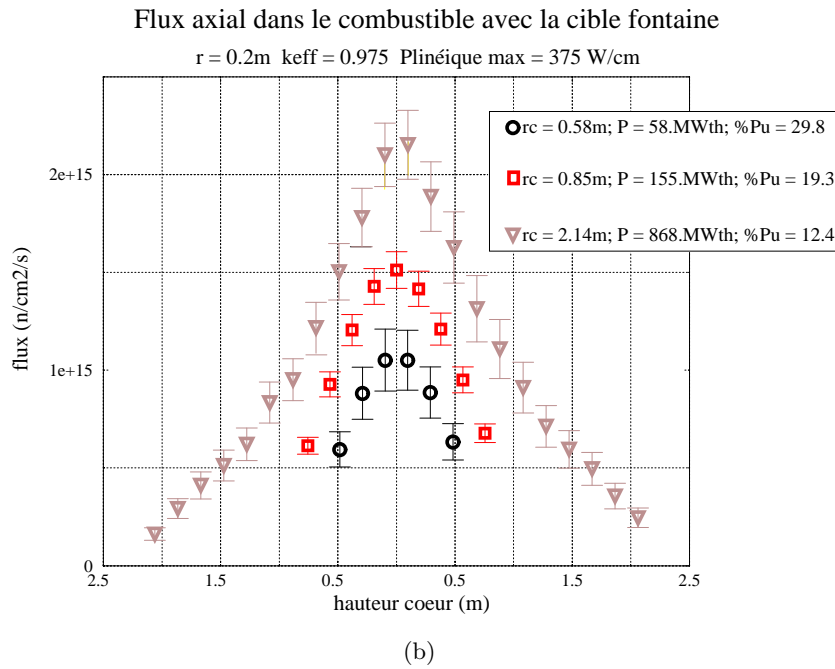
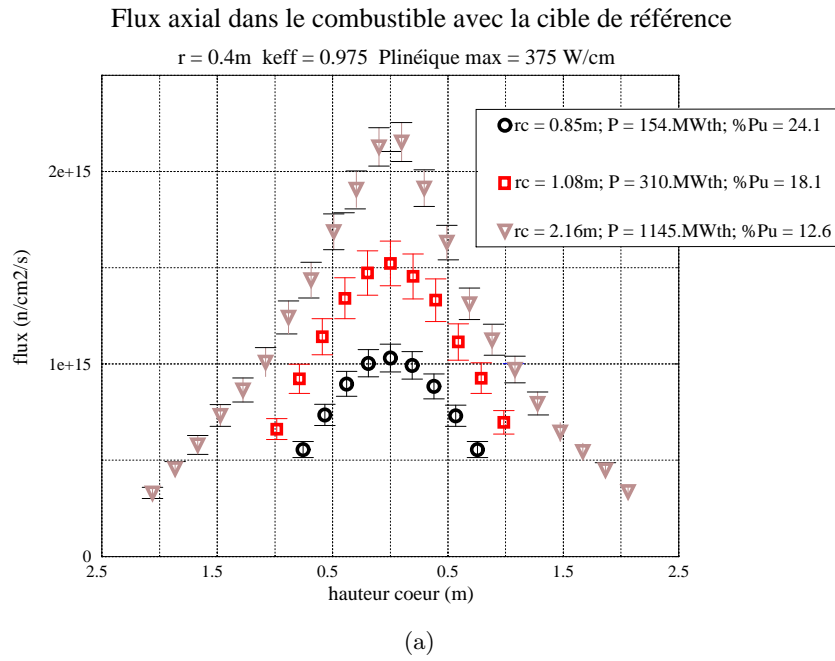


FIG. 5.2 – Evolution des flux axiaux à $r = 0.4\text{ m}$ pour la cible de référence (a) et à $r = 0.2\text{ m}$ pour la cible fontaine (b) en fonction de la hauteur du cœur.

Cette évolution de la forme du flux est à mettre en relation avec la valeur de k_∞ et par conséquent de la diminution des fuites lorsque la taille du cœur augmente.

Lorsque la taille du cœur augmente, la valeur de k_∞ diminue et le flux passe à une forme exponentielle. Cette forme exponentielle est préjudiciable à la bonne gestion du combustible, le facteur de forme étant fortement dégradé.

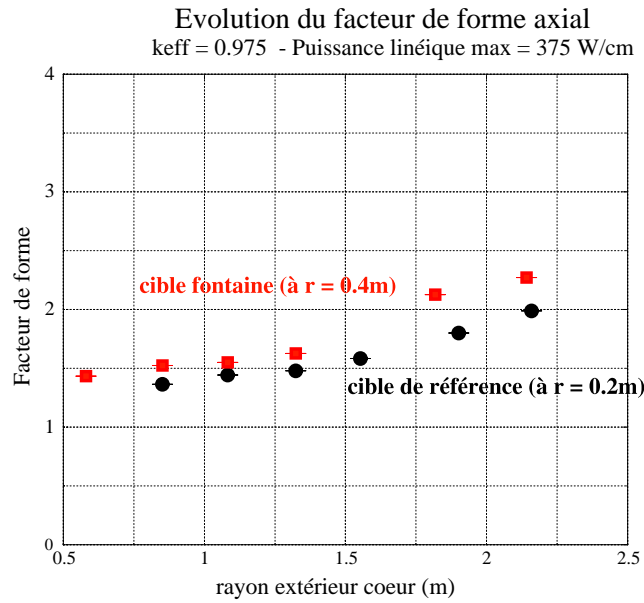
Le facteur de forme radial dans le plan médian du cœur est donné sur la figure 5.3. Pour les cœurs de dimension importante, le facteur de forme dans le plan horizontal médian devient nettement supérieur à la valeur explicitée précédemment dans le cas de Superphénix. Par ailleurs, il convient de remarquer que le facteur de forme pour la cible fontaine est supérieur à celui de la cible de référence. Le flux pour la cible de référence est atténué par un plus grand étalement spatial des neutrons source. En effet, le flux est donné par : $\phi(E, \vec{r}) = n(\vec{r})v$. Pour un nombre de neutrons source donné par seconde, la densité neutronique $n(\vec{r})$ diminue avec l'étalement des neutrons et par conséquent le flux diminue. En éloignant les premiers assemblages, on réduit le maximum du flux et donc le pic de puissance. Enfin, pour définir la puissance du démonstrateur, il apparaît que la taille de la cible influe directement sur la puissance totale délivrée. Pour la cible de taille réduite et donc le cœur le plus compact, formé de 48 assemblages de combustible respectant les contraintes sur l'enrichissement, le k_{eff} et la puissance linéique maximale, la puissance thermique obtenue est de 58 MW. Pour la cible de référence, le cœur respectant les mêmes contraintes est formé de 90 assemblages combustible et fournit une puissance thermique de 155 MW.

5.1.5 Calcul du facteur de multiplication infini (k_∞)

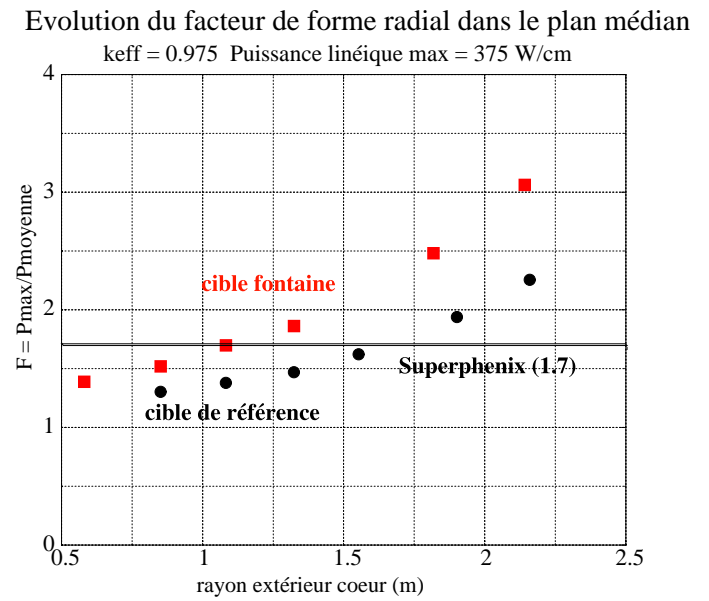
Le facteur de multiplication infini (k_∞) a été estimé à partir de la relation 1.9 où les sections macroscopiques de fission et d'absorption ainsi que le nombre moyen de neutrons émis par fission ont été calculés par le code MCNP. Les valeurs calculées de k_∞ sont données sur la figure 5.4. Pour un k_{eff} fixé à 0.975, le k_∞ tend vers k_{eff} lorsque le rayon augmente (i.e. les fuites diminuent). La transition d'un flux en forme de cosinus vers un flux de forme exponentielle a lieu pour un k_∞ de 1.05 pour les deux cibles. La transition n'a pas lieu exactement pour $k_\infty = 1$.

5.1.6 Influence du niveau de sous-criticité

Le niveau de sous-criticité a une influence profonde sur la forme du flux et donc sur la puissance totale délivrée à puissance linéique fixée. Il reste encore à le définir précisément même si les valeurs admises sont situées dans l'intervalle 0.95-0.98 avec des cas marginaux comme le concept de réacteur à β compensé dont la sous-criticité est de l'ordre de β_{eff} ($k_{eff} = 0.997$) [57]. La sous-criticité, donnée par la quantité $\rho = 1 - k_{eff}$, est présentée comme un gage de sûreté intrinsèque et un niveau suffisamment faible devrait éliminer le risque d'accident de criticité.



(a)



(b)

FIG. 5.3 – Evolution des facteurs de forme axial (a) et radial (b) pour les deux cibles et pour différentes tailles de cœur.

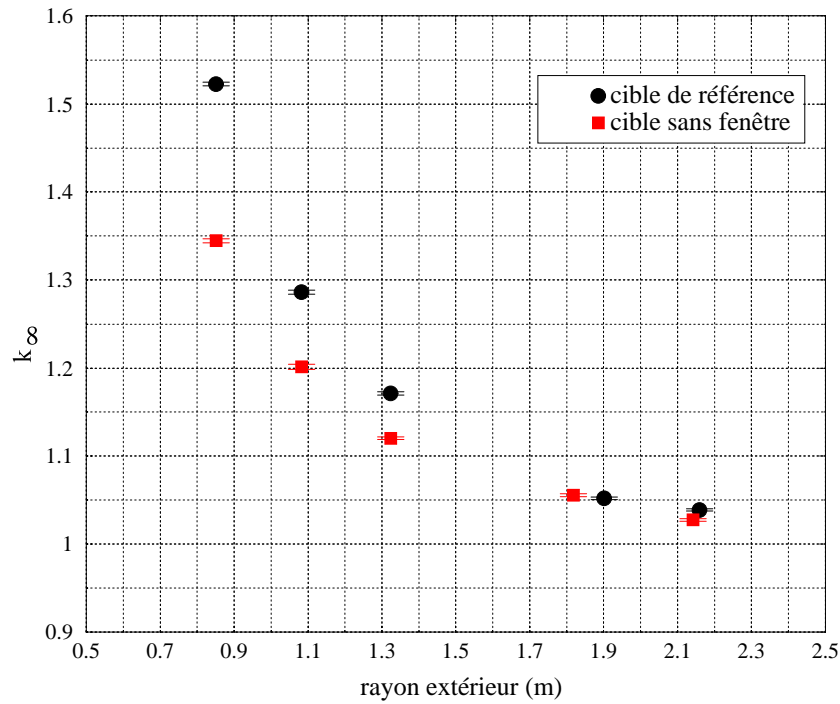


FIG. 5.4 – Evolution de la valeur de k_{∞} avec l'augmentation du rayon extérieur du cœur pour les deux cibles.

Une étude préliminaire de sûreté de la société Framatome ANP conclut à un k_{eff} de 0.95 dans le cas d'un scénario d'accident de compaction du cœur par réduction des jeux entre les assemblages [35]. L'objet principal de ce travail n'étant pas une étude de sûreté, nous avons examiné l'influence de la sous-criticité sur la forme du flux radial dans le plan médian du cœur pour trois valeurs de k_{eff} respectivement 0.90, 0.95 et 0.975. D'après la figure 5.5, on constate que plus le réacteur est sous-critique, pour une géométrie donnée, plus le flux sera piqué au centre et fortement exponentiel. En effet, le rapport entre la puissance délivrée par le faisceau et la puissance fournie par le cœur sous-critique augmente. Il semblerait intéressant d'avoir un k_{eff} suffisamment élevé pour assurer une forme de flux et un facteur de forme corrects. Un compromis doit être trouvé avec un niveau de sûreté élevé. Le niveau de sous-criticité devrait être déterminé pour maintenir le cœur sous-critique lors des variations de réactivité intervenant pendant des transitoires associés à des scénarios incidentels ou accidentels (compaction du cœur, perte de la cible,...).

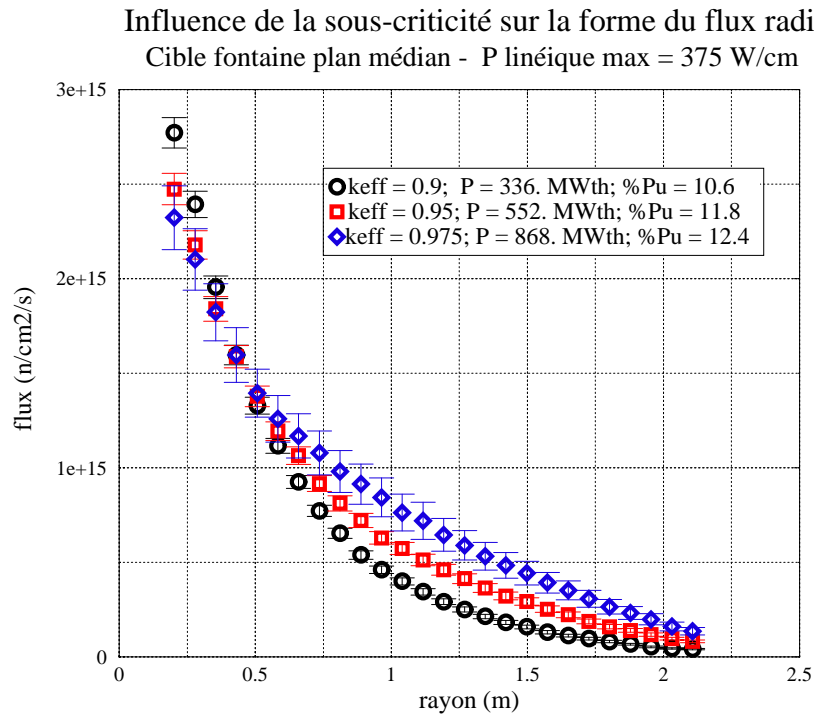


FIG. 5.5 – Influence de la sous-criticité sur la forme du flux radial dans le plan médian du cœur.

Le réacteur simulé pour quantifier l'influence du niveau de sous-criticité sur la forme du flux utilise la cible fontaine. Le cœur combustible est constitué de 798 assemblages avec un rayon extérieur de 2.14 m et une hauteur de 4.28 m. La puissance linéique maximale est de 375 W/cm comme précédemment.

Il apparaît une augmentation des facteurs de forme axial et radial lorsque le niveau de sous-criticité augmente. En effet, le pic de puissance à proximité de la source est renforcé. Cet effet,

$k_{eff} (\Delta k_{eff})$	0.898 (0.002)	0.952 (0.002)	0.975 (0.001)
Enrichissement Pu (%)	10.6	11.7	12.4
$P_{th} (\Delta P_{th})$ (MW)	336. (13.)	551. (23.)	868. (82.)
$I (\Delta I)$ (mA/100MW)	4.97 (0.20)	2.33 (0.10)	1.03 (0.10)
$P_{faisceau} (\Delta P)$ (MW)	16.69 (0.67)	12.83 (0.55)	9.28 (0.86)
$G = P_{th}/P_{faisceau}$	20.	43.	89.
F_{radial}	4.55	3.70	3.06
F_{axial}	3.46	2.88	2.27

TAB. 5.1 – *Caractéristiques neutroniques du réacteur simulé pour quantifier l’influence du niveau de sous-criticité sur la forme du flux avec la cible fontaine.*

cumulé à un flux de forme exponentielle qui réduit la puissance thermique totale délivrée et dégrade le rendement du cœur.

5.2 Amélioration du facteur de forme : solutions envisagées

5.2.1 Influence d’une zone tampon

Une première une solution, adoptée dans la définition du projet d’amplificateur d’énergie du CERN [9] pour réduire le pic de puissance au voisinage de la cible est d’incorporer une zone tampon (“buffer”) entre la source et le cœur. La zone tampon utilisée pour l’amplificateur d’énergie est constituée par un cylindre de plomb. Dans le cas du démonstrateur refroidi au gaz, nous avons réalisé une zone tampon en supprimant les crayons combustibles et les fils d’acier à l’intérieur des tubes hexagonaux au contact du module de spallation et en conservant de l’hélium à l’intérieur (voir figure 5.6). Les réflecteurs en acier au-dessus et en-dessous des tubes hexagonaux sont conservés mais l’épaisseur des tubes hexagonaux est réduite. Nous n’avons pas souhaité incorporer une zone tampon remplie de plomb pour ne pas modifier le spectre énergétique des neutrons source. L’incorporation d’une zone perméable aux neutrons facilite leur étalement spatial dans le cœur sans modifier leur vitesse. Pour un nombre de neutrons source, noté n_0 , délivrés instantanément, la densité neutronique de ces neutrons source est $\frac{n_0}{V}$ où V est le volume d’étalement (à l’intérieur de la zone tampon). La densité neutronique diminue lors du parcours de la zone tampon et donc la valeur du flux à l’entrée de la zone combustible est atténuée (comme l’atteste la figure 5.7).

L’incorporation de la zone buffer permet d’atténuer le pic central de puissance et d’améliorer la forme du flux et par conséquent le facteur de forme (le facteur de forme axial passe de 2. à 1.7). Cette amélioration s’accompagne d’un gain sur la puissance totale délivrée par le réacteur.

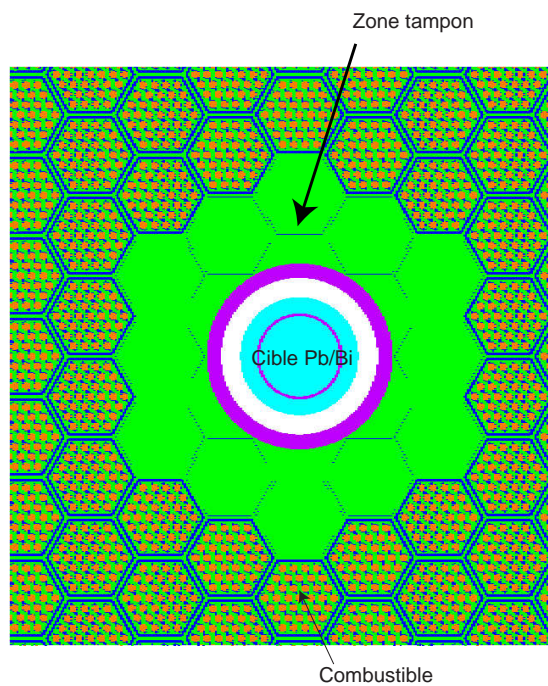


FIG. 5.6 – Coupe horizontale du cœur dans le plan médian. Mise en évidence de la zone tampon (“buffer”) entre la cible de spallation et le cœur.

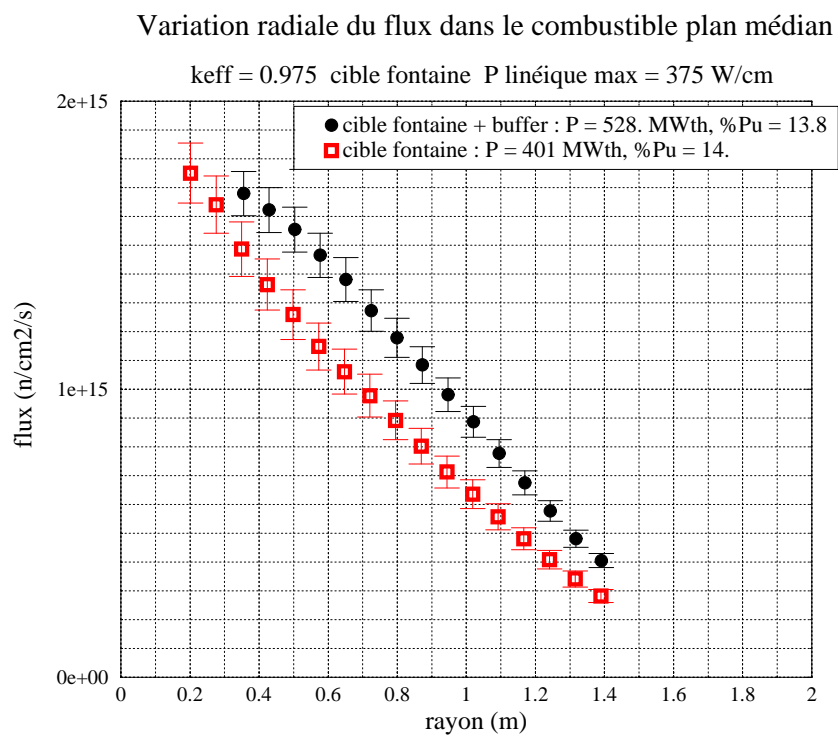


FIG. 5.7 – Influence d’une zone tampon (“buffer”) sur la forme du flux avec cible fontaine.

5.2.2 Influence de zones de densités de combustible variables

Pour améliorer le facteur de forme, il convient de réduire le pic de puissance au centre du réacteur comme explicité précédemment. Dans cette optique, d'autres solutions que la mise en place d'un buffer existent. Il est notamment possible de réaliser des zones de densités de crayons variables avec un enrichissement uniforme ou bien de réaliser des zones à enrichissement variable d'assemblages identiques. Dans le cas d'une densité de crayons variable, nous avons envisagé cinq zones différentes :

- la première zone (zone 1), la plus proche de la cible est constituée de 12 assemblages sans crayon (zone buffer comme précédemment),
- une deuxième zone (zone 2) constituée de 102 assemblages (tubes hexagonaux) comportant seulement 19 crayons de combustible par assemblage,
- une troisième zone (zone 3) de 78 assemblages avec 37 crayons de combustible par assemblage,
- une quatrième zone (zone 4) de 150 assemblages avec 61 crayons de combustible par assemblage,
- et enfin une dernière zone (zone 5) formée par des assemblages remplis par des crayons en acier sert de réflecteur.

Le cœur comprend un total de 330 assemblages de combustible. Les pourcentages de volumes occupés par les crayons sur le volume d'un tube hexagonal dans la partie combustible sont respectivement de 18.2 %, de 35.3 % et de 57.5 % pour les zones 2, 3 et 4. La densité de crayons varie dans les rapports 1 pour la zone 2, 2 pour la zone 3 et 3 pour la zone 4.

Numéro de zone	1	2	3	4	5
Type	tampon (He)	combustible	combustible	combustible	réflecteur
Composition	hélium	MOX	MOX	MOX	acier
Enrichissement Pu (%)	-	14.1	14.1	14.1	-
Crayons/assemblage	-	19	37	61	37
Rayon crayon (mm)	-	7.17	7.14	7.10	7.14
Vol crayon/Vol TH %	-	18.2	35.3	57.5	35.3
Vol He/Vol TH %	100.	63.	50.	30.	50.
Epaisseur TH (mm)	0.45	4.5	4.5	4.5	4.5

TAB. 5.2 – *Caractéristiques du cœur multi-zones.*

Les rayons des crayons de combustible (avec leurs gaines) sont respectivement de 7.17 mm, de 7.14 mm et 7.10 mm pour les zones 2, 3 et 4 (ces caractéristiques sont résumées dans le tableau 5.2).

Cœur	Référence	Densité variable
$k_{eff} (\Delta k_{eff})$	0.974 (0.001)	0.977 (0.002)
$k_s (\Delta k_s)$	0.977 (0.003)	0.969 (0.003)
$\varphi^* (\Delta \varphi^*)$	1.09 (0.20)	0.73 (0.14)
Enrichissement Pu %	14.0	14.1
$P_{th}(MW)$	464.	775.
I (ΔI) (mA/100MW)	1.21 (0.09)	1.27 (0.09)
$P_{faisceau}(MW)$	5.64	9.84
$G = P_{th}/P_{faisceau}$	82.	79.
F_{radial}	2.01	1.47

TAB. 5.3 – Comparaison des caractéristiques neutroniques du cœur de référence et du cœur à zones de densités de combustible variables.

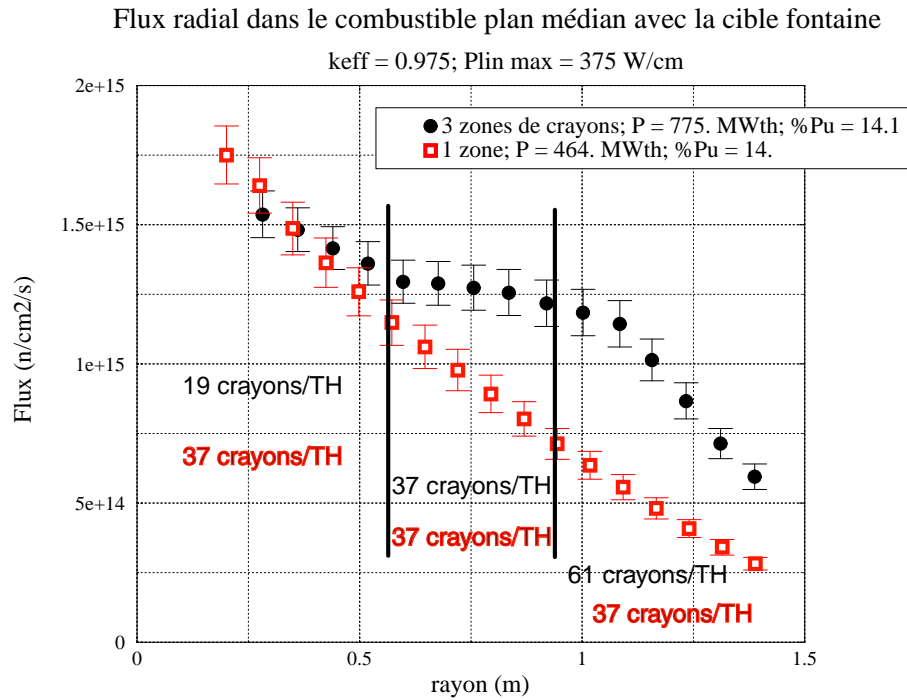


FIG. 5.8 – Influence d’une zone tampon (“buffer”) et du découpage du cœur en zones de densité de crayons variables sur la forme du flux avec la cible fontaine.

La comparaison entre les formes des flux radiaux dans le plan milieu du cœur (figure 5.8) laisse apparaître une amélioration de la forme du flux (plus proche d'un cosinus) avec une réduction de l'importance du pic de flux au centre du cœur et une remontée du flux dans les zones 3 et 4 et donc une amélioration du facteur de forme radial qui passe de 2.01 pour un cœur uniforme à 1.47 pour le cœur avec une zone buffer et trois zones de densités de crayons différentes. Par ailleurs, une réduction du flux maximal ralentit la fragilisation des matériaux par création de dommages. Cette amélioration permet une meilleure répartition de la puissance dans le cœur et donc un gain important sur la puissance totale délivrée. La puissance totale obtenue avec un cœur constitué de zones de densités variables de crayons est de 775 MWth contre 464 MWth avec un cœur uniforme (voir tableau 5.3). Par contre, on obtient une dégradation du k_s (voir tableau 5.3) qui s'explique par l'étalement spatial des neutrons source et l'augmentation des fuites au centre du cœur.

5.3 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons abordé la représentativité du démonstrateur pour un ADS de puissance à travers l'évaluation du facteur de forme et du niveau de flux. Une première approche analytique simplifiée, nous a permis de prévoir l'évolution du flux avec la valeur du facteur de multiplication infini. Les simulations Monte Carlo détaillées ont montré la transition d'une forme en cosinus vers une forme exponentielle du flux en fonction de la valeur du facteur de multiplication infini à facteur de multiplication effectif constant lorsque la taille du cœur (i.e la puissance totale à puissance linéique fixée) augmente. Les formes de flux exponentielles sont problématiques. En effet, cette forme renforce le pic de puissance au centre, dégrade le facteur de forme et limite la puissance totale maximale. Un ensemble de solutions a été examiné, à savoir la création d'une zone tampon entre la cible de spallation et le cœur sous-critique et différentes zones de densités variables de crayons de combustible. La mise en place d'une zone tampon semble indispensable pour réduire le pic de puissance au centre surtout dans le cas d'une cible de taille réduite. L'utilisation de différentes zones de densités variables de crayons de combustible permet d'obtenir une amélioration notable du profil du flux et du facteur de forme. Enfin, cette étude montre la différence entre un démonstrateur de faible puissance constitué d'un cœur de taille réduite favorisant les fuites de neutrons et notamment des neutrons source hors du cœur, et d'un cœur de puissance à vocation d'incinérateur dont la taille importante confine les neutrons. Dans le cas du démonstrateur, la démarche consiste à limiter les pertes de neutrons source en optimisant le couplage entre la cible et le cœur. Dans le cas d'un réacteur de puissance de taille importante où les fuites sont limitées, la démarche consiste à favoriser l'étalement spatial des neutrons source à l'intérieur du cœur en incorporant une zone tampon entre le module de spallation et le cœur et donc à réduire le facteur de forme par des zones de

densités ou d'enrichissements de combustible variables. Enfin, la représentativité de la transmutation est réalisée si des niveaux de flux équivalents entre le démonstrateur et l'incinérateur de puissance sont obtenus. La représentativité n'est pas réalisée pour une forme de flux exponentielle puisque des taux d'incinération des actinides mineurs très inégaux sont induits dans le cœur et le niveau de flux dans le réflecteur est trop faible pour la transmutation des produits de fission. La conservation d'un flux en forme de cosinus à l'aide des solutions présentées pour l'incinérateur assure la représentativité de la transmutation dans le démonstrateur.

Chapitre 6

Utilisation des réacteurs hybrides pour le démarrage d'une filière de réacteurs à sels fondus basée sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$

6.1 Introduction

Ce chapitre s'écarte du cadre strict du démonstrateur, à savoir l'incinération des actinides mineurs et la transmutation des produits de fission. Les systèmes hybrides peuvent jouer un rôle plus stratégique dans le cadre de la mise en route d'une filière basée sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. Ce chapitre final s'inscrit dans ce cadre et se veut exploratoire. Le démarrage d'une filière basée sur le cycle thorium/uranium nécessite une période de transition en vue de la constitution d'un inventaire en ^{233}U suffisant. L'originalité de cette transition est d'utiliser un réacteur à neutrons rapides pour constituer l'inventaire d'un réacteur à neutrons thermiques. Des études récentes menées au sein du groupe de l'ISN ont envisagé la production d'énergie à partir d'une filière reposant sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ basée sur des réacteurs à sels fondus critiques régénérateurs qui minimisent la production d'actinides [73]. Les scénarios basés sur les réacteurs à sels fondus sont considérés comme très innovants et se présentent comme des alternatives globales [61] [74]. Une transition à partir d'un combustible thorium/plutonium a été explorée, mais il s'avère que des temps de l'ordre de 15 à 20 ans suivant la qualité du plutonium sont nécessaires pour assurer le passage vers le cycle thorium/uranium à l'équilibre. L'utilisation d'un réacteur à neutrons rapides de type réacteur hybride permettrait de réduire la période de transition vers le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. En effet, la différence de spectre entre un réacteur à neutrons rapides et un réacteur à neutrons thermiques permet de limiter la consommation de l' ^{233}U au cours de sa production

comme le confirme les sections efficaces moyennes de fission et de capture de l' ^{233}U en spectre rapide et en spectre thermique données dans le tableau 6.1 et sa section efficace de fission donnée sur la figure 6.1. Ces différences de sections efficaces moyennes induisent des inventaires différents entre les spectres rapide et thermique. En effet, la concentration d'équilibre de l' ^{233}U d'un combustible uranium-thorium dans un spectre thermique en réacteur à sels fondus est de 1.5 % contre près de 9 % en spectre rapide.

Section efficace de fission de l'uranium 233

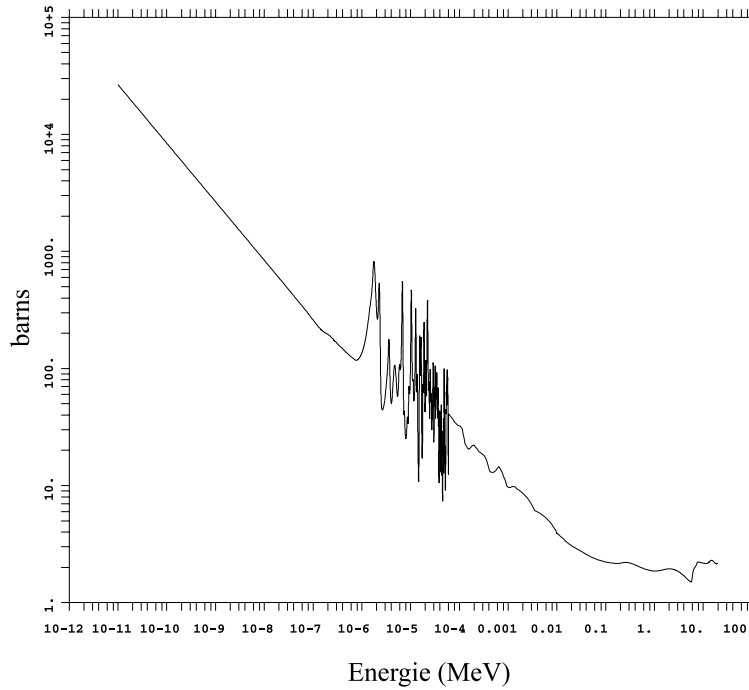


FIG. 6.1 – *Section efficace de fission de l'uranium 233 issue de la base ENDF/B-VI.*

L'inventaire au démarrage en ^{233}U d'un réacteur à neutrons thermiques à sels fondus de 2500 MWth est constitué de 70 tonnes de $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ avec une proportion de 1.5 % d' ^{233}U . Notre objectif est donc d'atteindre le plus rapidement possible cette concentration. L'intérêt des réacteurs hybrides est leur flexibilité qui permet de relâcher les contraintes sur le k_{eff} en se plaçant dans une configuration suffisamment sous-critique.

Combustible/Spectre	Solide/Rapide		Sels fondus/Thermique	
Isotope	σ_f (barn)	σ_c (barn)	σ_f (barn)	σ_c (barn)
^{232}Th	0.009	0.27	0.008	1.36
^{233}Pa	0.061	0.70	0.055	20.1
^{233}U	2.43	0.23	49.6	6.2
Flux ($\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$)	$1.2 \cdot 10^{15}$		$3.2 \cdot 10^{14}$	

TAB. 6.1 – Comparaison des sections efficaces moyennes de capture et de fission et des flux moyens pour les principaux isotopes du cycle thorium/uranium entre un ADS incinérateur refroidi à l'hélium et un réacteur critique à spectre thermique à sels fondus d'après la référence [73].

6.2 Première approche

Nous avons considéré un réacteur hybride d'une puissance de 1000 MWth constitué de trois zones de combustible avec une matrice et une couverture en thorium. Cette première approche va nous permettre d'évaluer les paramètres essentiels de notre réacteur.

6.2.1 Configuration initiale

Chaque zone est formée de 120 assemblages soit un total de 360 assemblages de combustible sous forme d'oxyde pour le cœur dont la composition isotopique est donnée dans le tableau 6.2. La composition du combustible est constituée du plutonium et des actinides mineurs (sans le neptunium) d'un combustible REP UOX 900 MWé irradié à un taux de 33 GWj/t et refroidi 50 ans pour tenir compte des délais de recherche nécessaires au développement d'une filière innovante, incorporé à une matrice d'oxyde de thorium. La couverture est constituée de 180 assemblages d'oxyde de thorium avec une proportion d'hélium réduite à 25 % au sein de ces assemblages contre 50 % pour la partie combustible. Il semble envisageable au sein des assemblages de combustible de séparer les crayons ou les pastilles de combustible avec les actinides mineurs et le plutonium des crayons d'oxyde de thorium pour limiter les opérations de retraitement ultérieures. En effet, le retraitement du thorium semble délicat par la présence d' ^{232}U formé par réactions (n,2n) sur l' ^{233}U dont la chaîne de décroissance aboutit à la formation de ^{208}Tl émetteur d'un γ de 2.6 MeV responsable des doses d'irradiation [5].

Les masses des principaux éléments à l'instant initial pour les différentes zones, numérotées par ordre croissant du centre vers la périphérie, sont données dans le tableau 6.3. La masse de thorium est répartie pour moitié dans les assemblages combustibles et pour moitié dans la couverture. Notre critère de 1.5 % d' ^{233}U à obtenir correspond à une masse de 1.1 tonne d' ^{233}U dans cette configuration.

Le k_{eff} initial est pris volontairement bas de l'ordre de 0.91, pour pouvoir suivre son évolution

Isotope	% atomique
^{232}Th	82.35
^{238}Pu	0.19
^{239}Pu	10.11
^{240}Pu	3.90
^{241}Pu	0.21
^{242}Pu	0.85
<i>Total Pu</i>	<i>15.26</i>
^{241}Am	2.19
^{243}Am	0.19
<i>Total Am</i>	<i>2.38</i>
^{244}Cm	0.007
^{245}Cm	0.003
<i>Total Cm</i>	<i>0.010</i>

TAB. 6.2 – *Composition isotopique du combustible à l'instant initial.*

Zone	1	2	3	Couverture	Total
Masse plutonium (kg)	2435	2435	2435	0.	7305
Masse thorium (kg)	12728	12728	12728	34856	73040
Masse américium (kg)	381	381	381	0.	1143
Masse curium (kg)	1.72	1.72	1.72	0.	5.17

TAB. 6.3 – *Masse des principaux éléments du combustible à l'instant initial.*

sur un temps relativement long, tout en sachant que sa valeur va augmenter du fait de la création d' ^{233}U . Les flux moyens à l'instant initial dans les différentes zones sont donnés dans le tableau 6.4. Il est évident que sous l'effet de la décroissance du flux et le ralentissement des neutrons, l'évolution du combustible sera différente suivant les zones. La figure 6.2 donne la forme du spectre en fonction de l'énergie dans les différentes zones du cœur et dans la couverture. On constate une atténuation du flux de neutrons avec l'éloignement du centre et un léger déplacement du spectre vers la partie thermique dans la couverture qui rend compte des variations de sections efficaces moyennes dans cette région (voir tableau 6.4).

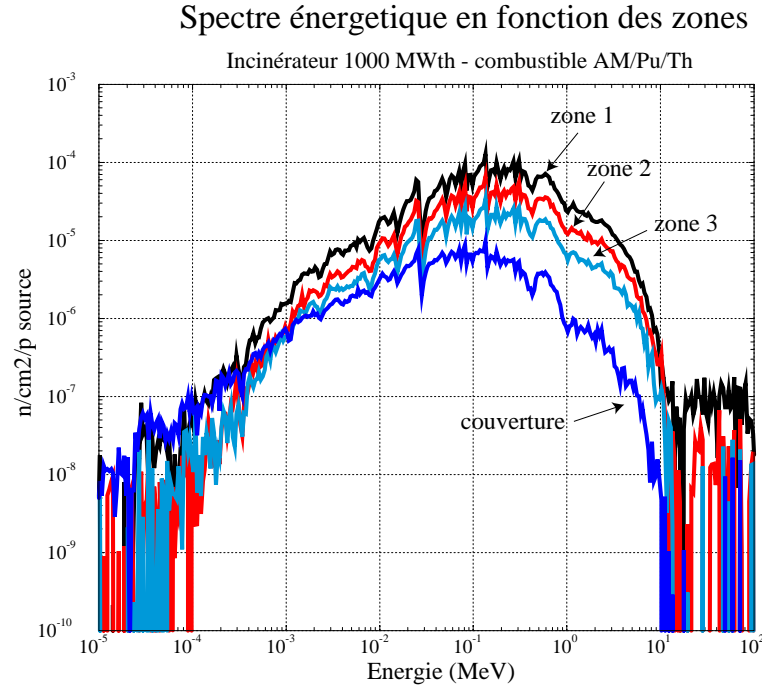


FIG. 6.2 – Spectre énergétique des neutrons dans les différentes zones et la couverture.

Zone	1	2	3	Couverture
Flux ($n.cm^{-2}.s^{-1}$)	$2,15.10^{15}$	$1,19.10^{15}$	$6,58.10^{14}$	$2,22.10^{14}$
$\sigma_{(n,\gamma)}^{232}\text{Th}$ (barn)	0.28	0.28	0.30	0.43
$\sigma_{(n,fission)}^{232}\text{Th}$ (barn)	0.009	0.009	0.008	0.003
$\sigma_{(n,\gamma)}^{233}\text{Pa}$ (barn)	0.78	0.77	0.87	1.78
$\sigma_{(n,fission)}^{233}\text{Pa}$ (barn)	0.057	0.058	0.055	0.019
$\sigma_{(n,\gamma)}^{233}\text{U}$ (barn)	0.24	0.24	0.25	0.39
$\sigma_{(n,fission)}^{233}\text{U}$ (barn)	2.50	2.50	2.58	3.43

TAB. 6.4 – Flux moyens et sections efficaces moyennes de capture et de fission du ^{232}Th , du ^{233}Pa de l' ^{233}U à l'instant initial dans les différentes zones.

6.2.2 Evolution des paramètres

Evolution du k effectif et de l'intensité du faisceau

La production d' ^{233}U entraîne une augmentation de la réactivité et donc du k_{eff} au cours du temps malgré la consommation du plutonium comme le confirme la figure 6.3. La valeur initiale du k_{eff} étant relativement faible, elle nécessite l'application d'une intensité du faisceau de protons élevée, de l'ordre de 50 mA au démarrage. Au bout d'une période de 30 mois, nécessaire pour atteindre la concentration désirée en ^{233}U au sein du ^{232}Th en moyenne sur l'ensemble des zones et la couverture, la valeur de k_{eff} est alors d'environ 0.95 et l'intensité du faisceau n'est plus que d'environ 22 mA (voir figure 6.3). Il est certain qu'il serait préférable de se placer dans une configuration moins sous-critique pour limiter l'intensité du faisceau de protons et augmenter le rendement de l'installation.

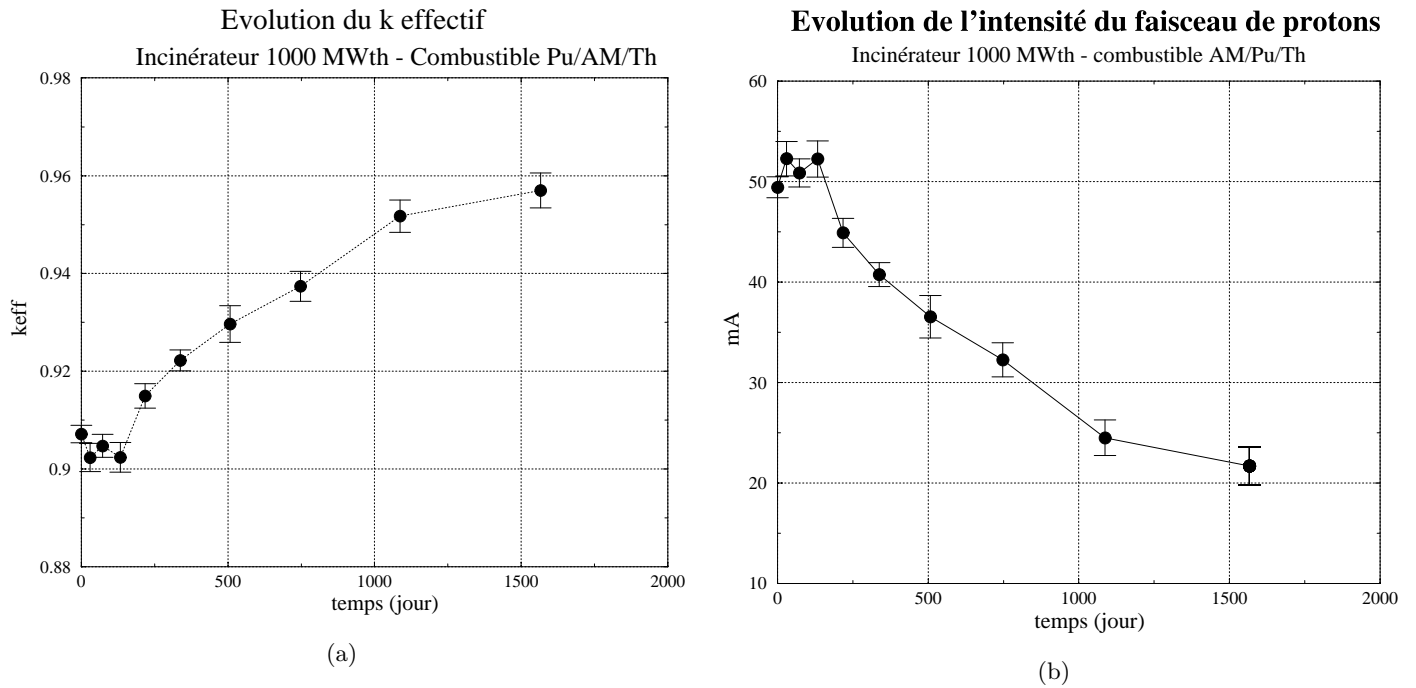


FIG. 6.3 – Evolution du k effectif (a) et de l'intensité (b) du faisceau de protons de 1 GeV.

Bilan neutronique

Maintenant, nous allons analyser la répartition des différentes réactions en regard des matériaux présents dans l'ensemble du réacteur au démarrage pour un k_{eff} de 0.907, donnée dans le tableau 6.5, pour mieux comprendre le rendement en ^{233}U de l'installation.

L'utilisation d'un combustible formé d'une proportion importante de plutonium induit un

	Créations par fission	Disparitions	
		par fission	par isotope %
Source	0.29	-	-
Fission	2.943	1.	²³² Th 2.73% ²³⁸ Pu 0.99% ²³⁹ Pu 82.13% ²⁴⁰ Pu 6.77% ²⁴¹ Pu 2.23% ²⁴² Pu 1.22% ²⁴¹ Am 3.57% ²⁴³ Am 0.27% ²⁴⁴ Cm 0.02% ²⁴⁵ Cm 0.07%
(<i>n</i> ,2 <i>n</i>)	0.032	0.016	<i>nat Pb</i> 24.71% ²⁰⁹ Bi 33.33% ²³² Th 35.05% ⁵⁶ Fe 5.74%
(<i>n</i> , γ)	-	2.134	¹⁶ O 0.19% nat Cr 1.73% ²⁵ Mn 0.77% nat Fe 6.00% nat Ni 3.14% nat Cu 0.18% nat Mo 2.36% nat W 0.85% <i>nat Pb</i> 0.10% ²³² Th 63.62% ²³⁸ Pu 0.33% ²³⁹ Pu 8.60% ²⁴⁰ Pu 3.74% ²⁴¹ Pu 0.17% ²⁴² Pu 0.69% ²⁴¹ Am 6.67% ²⁴³ Am 0.44%
Fuites	-	0.051	-

TAB. 6.5 – Bilan neutronique détaillé dans l'ensemble du réacteur avec la cible de référence au démarrage en vue de la génération d' ²³³U (en caractères gras l'acier, italique la cible et normal le combustible).

nombre moyen de neutrons par fission élevé de l'ordre de 2.95. A ces 2.95 neutrons par fission, la source de spallation pour notre k_{eff} de 0.907 apporte un supplément de 0.29 neutron par fission soit un total de 3.265 neutrons par fission disponibles en rajoutant les réactions (n,2n). Par ailleurs, les fuites hors du cœur sont minimisées par la présence d'une couverture importante en thorium. De ce bilan, on déduit que 1.35 neutron par fission vont participer à la génération d' ^{233}U par capture sur le ^{232}Th ce qui permet d'envisager une production de l'ordre de 500 kg d' ^{233}U par an pour un système hybride de 1000 MWth en négligeant les fissions sur l' ^{233}U produit.

Evolution des compositions

Notre critère étant la proportion d' ^{233}U dans le thorium, nous allons commencer par considérer l'évolution de la masse d' ^{233}U obtenue ainsi que la masse de ^{233}Pa dont la décroissance rapide en 27 jours aboutit à la formation d' ^{233}U .

En considérant l'ensemble des zones, la quantité nécessaire d' ^{233}U en ajoutant le ^{233}Pa dont les masses se stabilisent rapidement pour les différentes zones (figure 6.4), est atteinte en un peu moins de 30 mois comme le confirme la figure 6.5.

Les évolutions globales du plutonium et de l'américium par zones apparaissent différenciées sous l'effet de l'atténuation du flux avec l'éloignement du centre. Par ailleurs, on obtient une diminution de l'ensemble de l'inventaire en plutonium (même s'il s'agit essentiellement du ^{239}Pu) et en américium (principalement l' ^{241}Am). Par contre, pour le curium, on obtient une augmentation de l'inventaire qui se stabilise après environ 500 jours autour de 35 kg avec la création de ^{242}Cm qui se stabilise rapidement, et de ^{244}Cm . Il apparaît également une évolution différenciée de l'évolution de l' ^{233}U suivant les zones en relation avec la valeur du flux. La production d' ^{233}U est maximum dans la première zone, la plus proche du centre, mais la courbe de l'évolution dans cette zone subit une inflexion qui traduit l'effet de la consommation d'une partie de l' ^{233}U formé. Il est évident qu'il serait préférable d'éviter ce régime et qu'il conviendrait de rester dans la zone linéaire pour maximiser cette production.

En effet, dans les premières zones, on dépasse rapidement la valeur de 1.5 % en ^{233}U dans le ^{232}Th que l'on s'est fixée comme le confirme la figure 6.5 et l'on s'écarte du régime linéaire de production. On conçoit donc qu'une gestion par zones du combustible soit nécessaire.

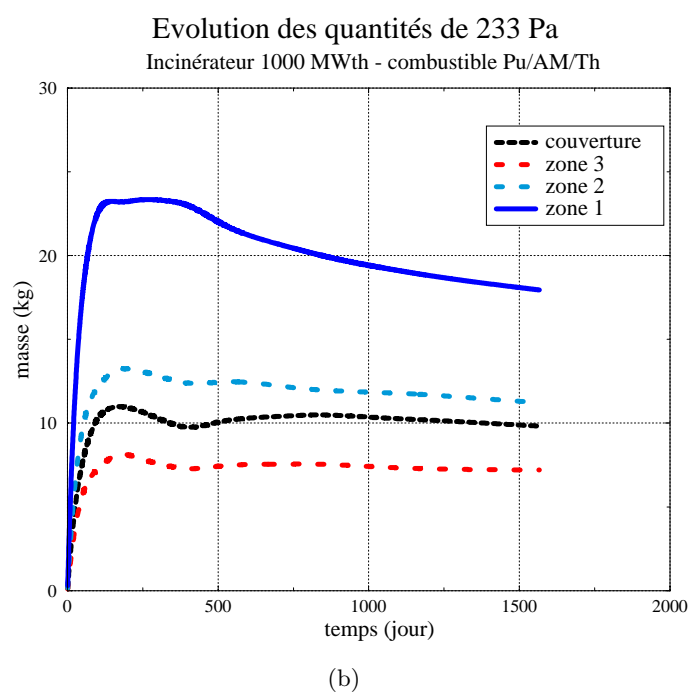
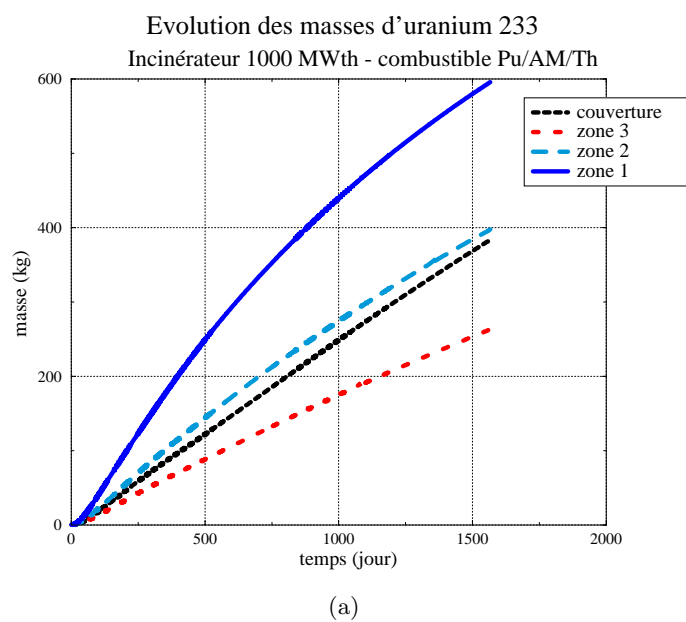


FIG. 6.4 – Evolution des masses d' ^{233}U (a) et de ^{233}Pa (b) dans les différentes zones et la couverture.

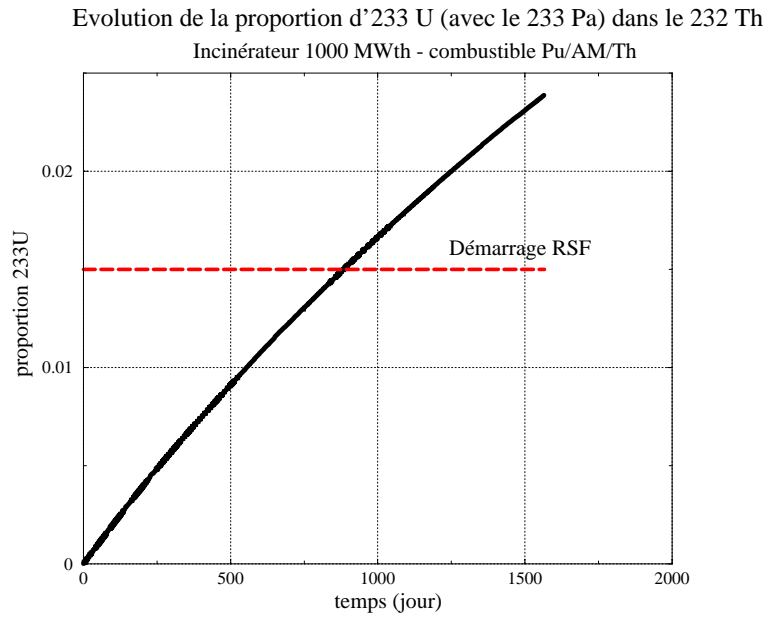
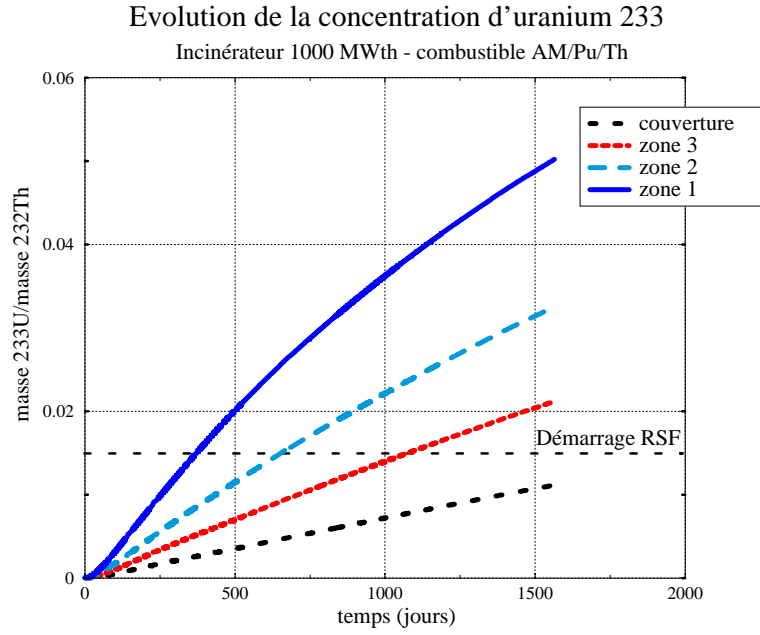


FIG. 6.5 – Evolutions de la proportion d' ^{233}U dans les différentes zones du cœur et la couverture (a) et de la proportion totale d' ^{233}U (avec le ^{233}Pa) dans le ^{232}Th moyennée sur l'ensemble des zones du cœur et la couverture (b).

6.3 Solution optimisée

6.3.1 Gestion par zone

Cette solution optimisée consiste à retirer les assemblages par zone lorsque la concentration en ^{233}U de 1.5 % désirée est obtenue pour éviter une consommation de l' ^{233}U déjà produit. Par ailleurs, cette solution permet de se placer à un niveau de sous-criticité moindre et donc de limiter l'intensité du faisceau. Nous avons conservé la configuration du cœur décrite précédemment à savoir trois zones de combustible avec le même nombre d'assemblages et une zone constituant une couverture. On a conservé le même combustible mais l'enrichissement en plutonium a été légèrement augmenté (voir tableaux 6.6 et 6.7) pour démarrer dans une configuration moins sous-critique.

Isotope	% atomique
^{232}Th	80.95
^{238}Pu	0.20
^{239}Pu	10.93
^{240}Pu	4.22
^{241}Pu	0.23
^{242}Pu	0.92
<i>Total Pu</i>	<i>16.50</i>
^{241}Am	2.37
^{243}Am	0.16
<i>Total Am</i>	<i>2.53</i>
^{244}Cm	0.006
^{245}Cm	0.003
<i>Total Cm</i>	<i>0.009</i>

TAB. 6.6 – Composition isotopique du combustible à l'instant initial.

Zone	1	2	3	Couverture	Total
Masse plutonium (kg)	2633	2633	2633	0.	7899
Masse thorium (kg)	12516	12516	12516	34856	72404
Masse américium (kg)	406	406	406	0.	1218
Masse curium (kg)	1.52	1.52	1.52	0.	4.56

TAB. 6.7 – Masses des différents éléments présents à l'instant initial pour les différentes zones.

La première zone sera retirée une fois la concentration en ^{233}U atteinte et remplacée par des assemblages de combustible neuf. Pour une meilleure incinération, le plutonium devrait être

multi-recyclé une fois le thorium et l'uranium retirés mais cette possibilité n'a pas été utilisée pour cette étude préliminaire. Le rechargement des zones en assemblages est basé sur la fréquence de rechargement de la première zone. L'évolution de la concentration en ^{233}U de la zone 1 fixe la période de rechargement à 13 mois comme le confirme la figure 6.6.

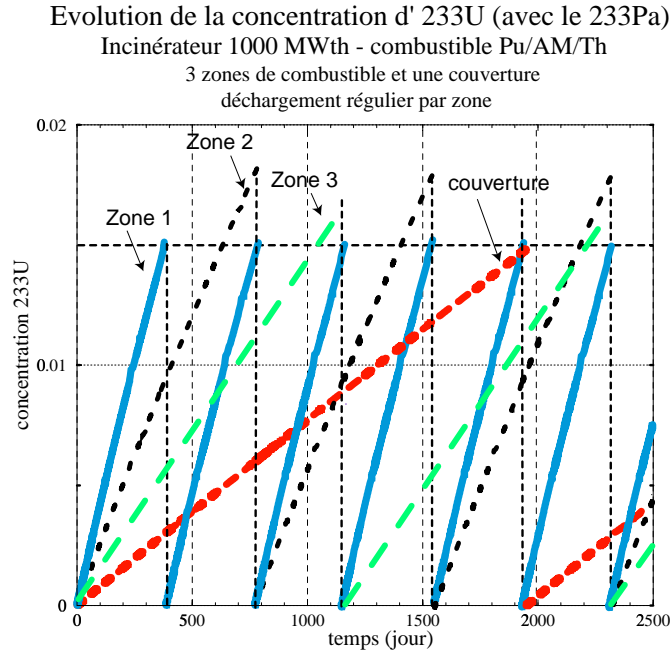


FIG. 6.6 – Evolution de la proportion d' ^{233}U au sein des différentes zones avec un déchargement basé sur la proportion dans la première zone.

La proportion de 1.5 % est atteinte pour la zone 2 lors du deuxième rechargement de la première zone, pour la zone 3 lors du troisième rechargement et pour la couverture au cinquième rechargement. Avec ce schéma, on obtient une proportion quasi équivalente au sein de l'ensemble des zones et on obtient l'inventaire de deux réacteurs à sels fondus tous les 5 ans sans tenir compte des délais occasionnés par les opérations de déchargement-rechargement des différentes zones.

Le tableau 6.8 donne une comparaison entre la composition isotopique obtenue dans la couverture, qui représente la moitié de la masse de thorium utilisée dans notre réacteur hybride, avec la composition à l'équilibre d'un combustible uranium-thorium d'un réacteur à sels fondus de 2500 MWth de type AMSTER [75]. Les proportions dans les autres zones du cœur sont équivalentes. Le vecteur isotopique de l'uranium est assez différent mais est plus réactif pour le réacteur hybride car essentiellement composé d' ^{233}U . Par ailleurs, suite à un temps d'irradiation restreint, la proportion d'actinides mineurs est négligeable et les proportions de ^{228}Th et ^{232}U , responsables de la formation de ^{208}Tl , sont environ dix fois plus faibles. Cette composition est donc tout à fait adaptée au démarrage d'un réacteur à sels fondus et sa mise à l'équilibre interviendra rapidement.

Isotope	% atomique ADS	% atomique RSF
^{228}Th	$1.2 \cdot 10^{-4}$	0.0016
^{229}Th	0.0011	0.0014
^{230}Th	$<10^{-5}$	0.0043
^{231}Pa	0.137	0.0533
^{233}Pa	2.063	0.9208
^{232}U	0.010	0.124
^{233}U	96.935	54.14
^{234}U	0.800	22.96
^{235}U	0.010	7.041
^{236}U	$8.1 \cdot 10^{-5}$	9.111
total Np	$<10^{-5}$	1.874
total Pu	$<10^{-5}$	2.796
total Am	$<10^{-5}$	0.672

TAB. 6.8 – *Composition isotopique du combustible thorium-uranium déchargé de la couverture comparé aux proportions de l’inventaire d’un combustible thorium-uranium à l’équilibre d’un réacteur à sels fondus de 2500 MWth.*

6.3.2 Evolution de l’intensité

Par ailleurs, l’évolution du k_{eff} lors de ce cycle est donnée sur la figure 6.7 en tenant compte de cette gestion par zone. La valeur du k_{eff} reste comprise dans l’intervalle 0.95-0.98 entre deux déchargements ce qui permet de limiter l’intensité maximale du faisceau de protons qui reste en dessous de 25 mA (voir figure 6.7).

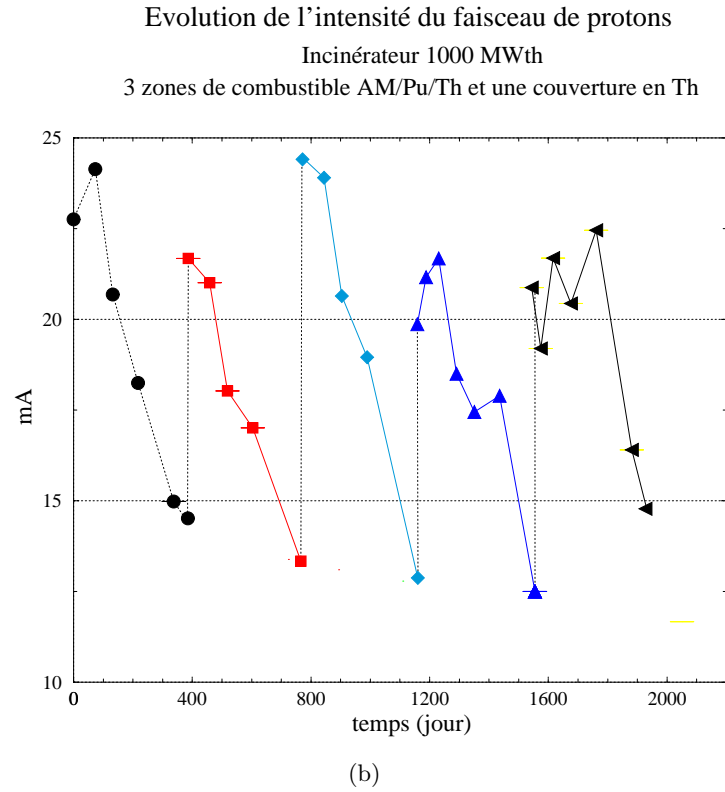
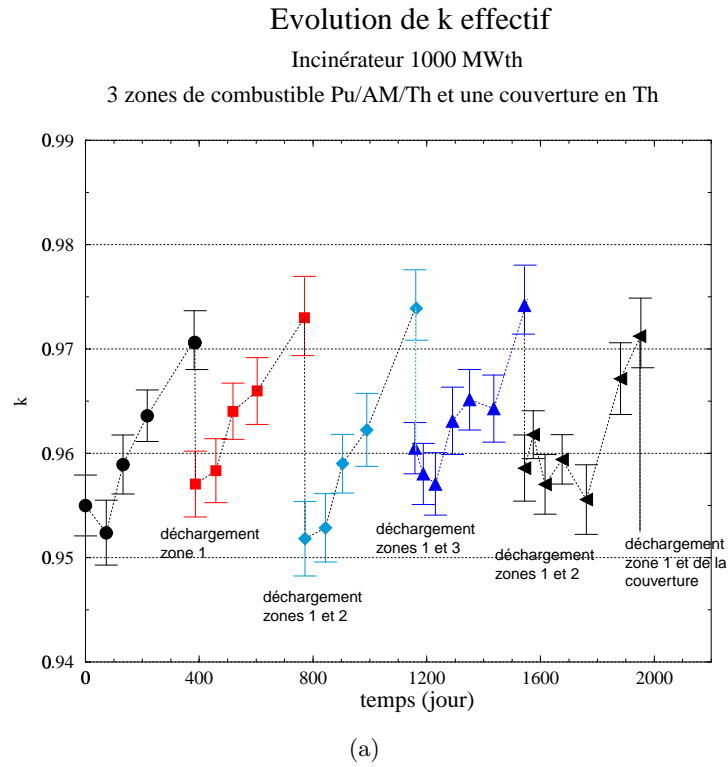


FIG. 6.7 – Evolution du k effectif (a) et de l'intensité (b) du faisceau avec une gestion par zone.

6.4 Conclusions

Ce chapitre a permis de mettre en perspective les possibilités de génération d' ^{233}U avec un réacteur hybride pour alimenter un réacteur à neutrons thermiques de type réacteur à sels fondus basé sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$. La flexibilité autorisée par la sous-criticité permet une réduction de la période nécessaire à la constitution de l'inventaire en ^{233}U . Par ailleurs, nous avons exploré une gestion par zone pour optimiser la répartition de la concentration de l' ^{233}U au sein du cœur et limiter les variations de réactivité et par conséquent de l'intensité du faisceau de protons. Cette solution permet l'obtention de l'inventaire de deux réacteurs à sels fondus de 2500 MWth en 5 ans de fonctionnement (sans tenir compte des délais liés aux opérations de déchargement-rechargement) d'un réacteur hybride d'une puissance 1000 MWth. Par ailleurs, cette utilisation des réacteurs hybrides qui associe l'incinération des actinides mineurs et du plutonium en évitant leur dispersion dans plusieurs filières avec la génération d' ^{233}U élargit le champs d'application des réacteurs hybrides. Enfin, des améliorations sont possibles pour augmenter les performances de génération d' ^{233}U avec un réacteur hybride en utilisant des zones de densités de crayons variables pour améliorer le rendement du cœur et la puissance délivrée comme exposé dans le chapitre précédent. La réalisation d'un multi-recyclage du plutonium et des actinides mineurs utilisés est souhaitable pour assurer leur incinération et la réduction de la radiotoxicité. Ce dernier point s'écarte du cadre de ce travail et s'intégrerait dans des études de scénarios pour assurer une transition vers un cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ utilisant des réacteurs à sels fondus.

Conclusions

L'objet de ce travail a consisté à simuler et à optimiser la neutronique du concept de démonstrateur de réacteur hybride d'une puissance de 100 MWth avec un caloporteur gaz (hélium) proposé par la société Framatome ANP en vue de réaliser l'incinération des actinides mineurs et la transmutation des produits de fission. La démonstration doit s'effectuer en deux phases, la première permettant de valider et de fiabiliser le concept de réacteur hybride expérimental (XADS) avec une technologie de combustible de référence de type MOX (U/Pu) déjà disponible et éprouvée. Dans ce cadre, nous avons caractérisé le bilan neutronique de la configuration de référence en fonction des dimensions et des matériaux du cœur. Il apparaît qu'une forme orthocylindrique de la partie combustible du cœur optimise l'utilisation des neutrons source. Du point de vue des matériaux, de nombreuses captures stériles se produisent dans des éléments tels que le molybdène, le tungstène ou le manganèse présents en faibles proportions dans l'acier inoxydable utilisé. L'utilisation d'un réflecteur en nickel qui présente des propriétés neutroniques intéressantes, à la place d'un réflecteur en acier, a apporté un gain sur la taille du réflecteur. L'optimisation du couplage source-cœur a été abordée sous deux aspects différents. Le premier a consisté en une réduction de la taille de la cible par l'utilisation d'une cible sans fenêtre qui procure un léger gain sur le couplage et le deuxième en insérant un amplificateur de source constitué par un anneau fortement enrichi en plutonium. Cette deuxième solution procure un gain important sur le couplage mais l'énergie déposée est importante et poserait des problèmes de refroidissement et d'intégration dans cette zone déjà très sollicitée thermiquement par la cible de spallation. Les calculs d'évolution avec le combustible de référence ont permis de déterminer la perte de réactivité associée (4000 pcm en trois ans) pour un combustible MOX (U/Pu) enrichi à 24 % en plutonium et les variations d'intensité à prévoir dans le cas d'un pilotage de l'installation par l'accélérateur. La deuxième phase de démonstration, au sein du réacteur hybride expérimental de transmutation (XADS), consistera à évaluer et à valider le comportement de combustibles variés à base d'actinides mineurs ou de thorium et leur influence sur la réactivité. Ainsi, nous avons considéré le comportement d'un combustible à base d'actinides mineurs sous forme d'oxyde. Une augmentation de la réactivité est mise en évidence suite à la transformation des isotopes fertiles de l'américium (^{241}Am et ^{243}Am) présents en quantités importantes vers des isotopes du plutonium fissiles en spectre rapide (^{238}Pu et ^{240}Pu). L'ajout

d'une proportion de l'ordre de 15 % de plutonium stabilise la réactivité au cours de l'évolution et l'ajout de zirconium dans le rôle de matrice inerte limite la puissance volumique. Il est évident que la réalisation d'un combustible à base d'actinides mineurs est dépendant de la mise en place d'une unité de séparation poussée dont l'échéance est difficilement prévisible, même si la faisabilité technique devrait être démontrée à l'horizon 2005. Dans un souci de pragmatisme, nous avons considéré deux combustibles à base d'actinides mineurs issus des combustibles UOX et MOX (U/Pu) actuellement stockés en attente d'un retraitement différé avec une phase de refroidissement importante. Pour le démonstrateur, une première étape ferait appel à un chargement avec un nombre limité d'assemblages à base d'actinides mineurs au sein d'un cœur d'assemblages de combustible MOX (U/Pu). Nous constatons une discontinuité du profil de puissance au niveau de ces assemblages dont la valeur maximale reste toutefois acceptable. D'autre part, les consommations relatives des actinides mineurs dans ces assemblages ne sont pas représentatives de l'évolution d'un cœur complet en relation avec des spectres neutroniques différents même si on constate un comportement global semblable avec une réduction importante des quantités d'américium mais avec une augmentation des quantités de ^{244}Cm et de ^{238}Pu . Dans des perspectives de développement à plus long terme de l'énergie nucléaire, un chargement à base d'un combustible d'oxyde de thorium-plutonium en vue d'une transition vers un cycle thorium-uranium moins générateur d'actinides mineurs a été étudié pour le démonstrateur.

Par ailleurs, la transmutation de deux produits de fission, le ^{99}Tc et l' ^{129}I , a été examinée au sein d'un réflecteur en nickel dans des assemblages dédiés dans lesquels sont dilués les isotopes à transmuter. La demi-vie effective et le taux de transmutation sont fortement dépendants de la dilution de l'élément à transmuter en relation avec l'effet d'auto-protection des résonances. Dans un but pédagogique, nous avons déterminé les concentrations d'équilibre entre le taux de production et le taux de transmutation de ces éléments dans le démonstrateur qui donnent des demi-vies associées de 37 ans et de 70 ans pour le ^{99}Tc et l' ^{129}I respectivement. Ces résultats donnent les ordres de grandeur des constantes de temps nécessaires à la transmutation.

D'autre part, le passage du démonstrateur vers un incinérateur de puissance constituera une étape importante. De plus le module de spallation qui a été surdimensionné pour le démonstrateur et qui est une zone de forte puissance aura été testée. Nous avons considéré la représentativité du démonstrateur pour un incinérateur à l'aide de l'évolution du facteur de forme et du flux à puissance linéaire maximale fixée avec l'augmentation des dimensions du cœur et donc de la puissance totale. La forme du flux, lorsque la taille du cœur augmente, passe d'une forme en cosinus (pour les cœurs de petites dimensions) à une forme en exponentielle, problématique pour le facteur de forme (pour les cœurs de grandes dimensions). Des solutions ont été examinées avec l'incorporation d'une zone tampon entre la cible et le cœur de manière à réduire le pic de puissance au centre du cœur, ainsi que la mise en place de différentes zones de densités de combustible variables. Enfin, dans des perspectives de développement durable de l'énergie

nucléaire, nous avons envisagé de réaliser la transition vers un cycle thorium-uranium basée sur des réacteurs à sels fondus critiques à neutrons thermiques à partir de réacteurs hybrides chargés en thorium, actinides mineurs et plutonium avec une couverture en thorium. Ce scénario permet de réduire la période de transition avec l'obtention de l'inventaire de deux réacteurs à sels fondus critiques d'une puissance de 2500 MWth en cinq ans de fonctionnement d'un réacteur hybride d'une puissance de 1000 MWth.

Enfin, la sûreté a été abordée avec le calcul des flux et des débits de dose des neutrons à l'extérieur de la cuve, dont la principale conclusion à retenir est que les doses sont dominées par les neutrons de fission et non par les neutrons de spallation. De plus, une mesure en temps réel du niveau de sous-criticité est indispensable pour garantir la flexibilité et l'intégrité de l'installation. Mais de nombreux points restent à explorer dans ce domaine de la sûreté tels que le mode de pilotage le mieux adapté ou le niveau de sous-criticité garantissant une sûreté intrinsèque de l'installation. Le lancement du programme XADS européen permettra de fédérer les travaux accomplis au cours de ces dernières années et d'apporter les réponses aux questions encore ouvertes pour rendre possible la mise en route d'une installation expérimentale de démonstration à l'horizon 2015 pour un développement durable de l'énergie nucléaire.

Annexe A

Outils de simulation

A.1 Le code MCNPX

A.1.1 Présentation générale

Le code de calcul MCNPX version 2.1.5 [15] est développé au Los Alamos National Laboratory (LANL/USA) dans le cadre du projet APT (Accelerator Production of Tritium) [76]. Ce code de calcul est une extension du code de calcul MCNP 4B [14]. Il est défini comme un code Monte Carlo pour toutes particules et toutes énergies. Ce code de calcul intègre les codes suivants :

- le code de calcul MCNP 4B pour le transport à “basse énergie”, c’est à dire pour des neutrons d’énergies inférieures à 20 MeV ou 150 MeV (suite à l’extension des bases de sections efficaces des neutrons, des protons et des photons, pour certaines réactions et un certain nombre de matériaux [77]),
- LAHET [78] (Los Alamos High Energy Transport), adaptation du code HETC (High Energy Transport Code) [79] [80] qui fut développé à Oak Ridge National Laboratory (ORNL/USA) et qui traite les réactions dans le domaine des énergies intermédiaires entre 150 MeV et quelques GeV,
- le CEM package, code qui traite également les réactions dans le domaine des énergies intermédiaires entre 150 MeV et quelques GeV,
- et le code FLUKA pour des énergies de quelques GeV à quelques TeV [81].

Ces différents codes ont été validés séparément dans leurs domaines d’application. Dans le cas des études sur les réacteurs hybrides, c’est essentiellement les modèles de transport pour les énergies intermédiaires qui simulent les réactions de spallation, et les réactions à basse énergie qui vont se confronter. Le code de transport MCNP 4B est largement validé pour les calculs de neutronique à basse énergie. Par contre, les codes de calcul qui modélisent les réactions de

spallation présentent des incertitudes importantes pour des énergies inférieures à 150 MeV ainsi que pour la production des particules résiduelles (particules α , D, T..), d'où la nécessité d'une extension des bases de données de sections efficaces vers cette énergie qui nécessite un travail expérimental important [82] [83].

A.1.2 Modèles de spallation

La spallation est un phénomène complexe dont la simulation est délicate. La spallation est modélisée par un mécanisme à deux étapes (figure A.1), à savoir la cascade intranucléaire puis l'évaporation et/ou la fission. La cascade intranucléaire est une étape rapide de l'ordre de 10^{-23} à 10^{-22} s. Elle correspond à l'interaction du projectile avec les nucléons du noyau vus de manière individuelle. Il s'ensuit une succession de collisions nucléon-nucléon lors desquelles des particules rapides vont être éjectées et laisser place à un noyau fortement excité (de l'ordre de quelques centaines de MeV). La seconde étape correspond à la désexcitation du noyau qui s'opère en quelques 10^{-19} à 10^{-18} s. Cette désexcitation procède par évaporation de particules légères telles que n, p, d, t, α ... et/ou fission. Les processus de refroidissement sont en compétition et se combinent jusqu'à ce que l'énergie d'excitation du noyau résultant soit inférieure à l'énergie de liaison du nucléon le moins lié. Le noyau alors obtenu va poursuivre son refroidissement par émission γ et/ou conversion interne jusqu'à atteindre le niveau fondamental ou un éventuel état isomérique. Une étape intermédiaire est parfois nécessaire pour assurer la continuité entre les processus rapides et lents. Il s'agit d'une mise à l'équilibre thermique du noyau. On parle de modèle de pré-équilibre.

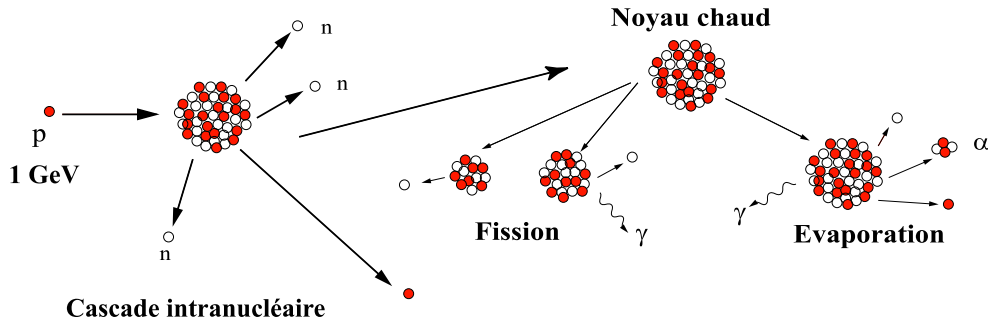


FIG. A.1 – Schématisation de la réaction de spallation avec un mécanisme à deux étapes (la cascade intranucléaire puis l'évaporation et/ou fission).

Le code de calcul MCNPX intègre les trois modèles de cascade intranucléaire suivants :

- le modèle de Bertini [84],
- le code ISABEL [85] [86],
- le code CEM [87].

Notre objectif n'était pas de comparer les différents modèles de spallation, mais d'obtenir une source de neutrons représentative : nous avons donc utilisé le modèle par défaut de LAHET pour simuler notre source de spallation. La cascade intranucléaire est calculée avec le modèle de Bertini sans modèle de pré-équilibre. Les diffusion élastiques et non élastiques sont prises en compte pour les neutrons et les protons. Par ailleurs, la fission à haute énergie est traitée par le modèle du Rutherford Appleton Laboratory (RAL/UK) pour les noyaux de Z supérieur à 71. Pour les noyaux légers, leur désintégration est simulée à l'aide du modèle de Fermi-Breakup. Un travail de comparaison et de test des différents modèles a été effectué dans la référence [88].

A.2 Couplage avec le code d'évolution REM (Règles pour l'Evolution avec MCNPX)

A.2.1 Equations de Bateman

Les équations de Bateman gouvernent l'évolution de la composition des matériaux en fonction du temps dans le réacteur en tenant compte des sections efficaces des différentes réactions possibles ainsi que des décroissances radioactives successives. L'évolution est définie pour les noyaux du combustible placé dans les crayons. Nous avons fait l'approximation que les matériaux de structure (acier) n'évoluent pas sur de courtes périodes de l'ordre de quelques années. L'évolution des structures serait nécessaire pour tenir compte de la production d'hélium ou la création de dpa (déplacements par atome) par exemple. L'évolution en fonction du temps du nombre de noyaux i du combustible, soumis au flux ϕ , s'écrit sous la forme [89] :

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = -N_i(t)\sigma_i^{abs}\phi + \sum_{j \rightarrow i} N_j(t)\sigma_{j \rightarrow i}^{cap}\phi - \lambda_i N_i(t) + \sum_{j \rightarrow i} \lambda_{j \rightarrow i} N_j(t) \quad (\text{A.1})$$

avec :

- $N_i(t)$ le nombre de noyau i à l'instant t ,
- σ_i^{abs} la section efficace moyenne d'absorption du noyau i (barns),
- $\sigma_{j \rightarrow i}^{cap}$ la section efficace moyenne du noyau j de la réaction produisant i (barns),
- λ_i la constante de décroissance totale du noyau i (s^{-1}) et
- $\lambda_{j \rightarrow i}$ la constante de décroissance partielle du noyau j vers le noyau i (s^{-1}).

L'ensemble des produits de fission est généré suivant les rendements de fission tabulés. On détermine donc l'évolution de plus de 300 noyaux simultanément (autant d'équations couplées) en considérant l'ensemble des réactions dont les sections efficaces existent dans les bases disponibles. Enfin, l'évolution des matériaux du combustible est calculée dans l'ensemble des cellules composant le combustible.

A.2.2 Méthode de résolution

L'intégration numérique est réalisée à l'aide d'une méthode de Runge Kutta du quatrième ordre à plusieurs pas variables. L'équation A.1 peut s'écrire de manière plus compacte sous une forme matricielle. La matrice d'évolution comprend de nombreux termes non diagonaux nuls d'où le choix d'une gestion informatique par liste des coefficients de cette matrice pour optimiser l'utilisation de la mémoire. La précision de l'intégration est évaluée après chaque intégration par une méthode du χ^2 . Trois cas sont alors envisageables suivant la valeur du χ^2 calculé par rapport aux valeurs fixées des χ_{min}^2 et χ_{max}^2 :

- Soit la valeur du χ^2 calculé est inférieure à la valeur fixée du χ_{min}^2 auquel cas le calcul est non validé et le pas d'intégration est divisé par deux.
- Soit la valeur du χ^2 calculé est comprise dans l'intervalle $[\chi_{min}^2; \chi_{max}^2]$ auquel cas le calcul est validé et le pas d'intégration est gardé constant ou est augmenté si le pas précédent n'était pas divisé.
- Soit la valeur du χ^2 calculé est supérieure à la valeur fixée du χ_{max}^2 auquel cas le calcul est non validé et le pas d'intégration est divisé par deux.

Par ailleurs, l'ensemble des réactions possibles est pris en compte et l'ensemble des produits de fission est généré suivant les distributions en masse tabulées.

A.2.3 Couplage

Le couplage est géré par le code REM dont les actions consistent à :

- initialiser les compositions des calculs MCNPX
- gérer la succession des calculs MCNPX
- obtenir les sections efficaces moyennes dont les évolutions et leurs dérivées sont continues et les flux moyens. Ces quantités sont des résultats du calcul MCNPX.
- gérer l'intégration numérique des équations de Bateman à plusieurs pas variables et le calcul du pas en fonction de la précision requise.

La succession des différentes étapes qui constituent la réalisation du couplage entre les différents calculs MCNPX et les intégrations est donnée sur la figure A.3.

Par ailleurs, les sections efficaces sont issues des bases disponibles à savoir ENDF/B-VI ou JENDL-3.2 ou JEF-2.2 et elles sont reconstruites par le code NJOY [58] pour tenir compte de l'élargissement des résonances à la température désirée. Cet ensemble, décrit sur la figure A.3 permet l'étude d'un ensemble varié de scénarios et de types de réacteurs (combustibles solides, à sels fondus,...).

Etapes du couplage REM/MCNPX

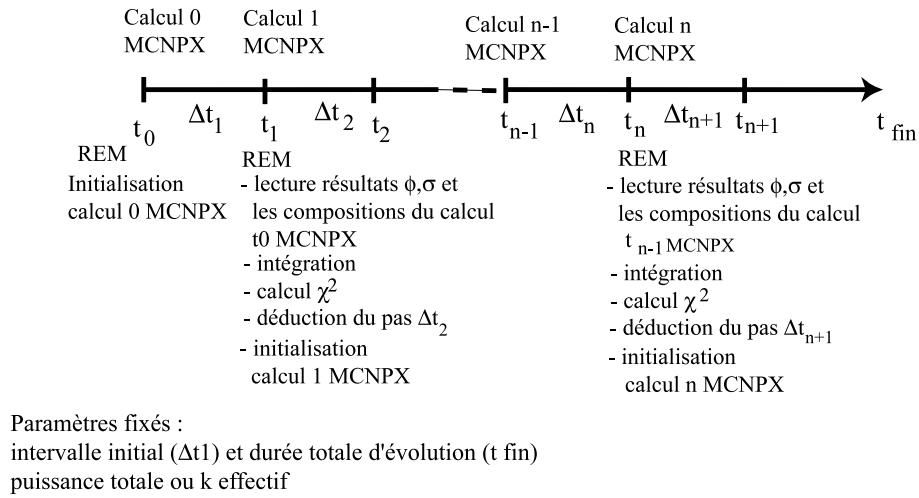


FIG. A.2 – Représentation schématique des étapes du calcul de l'évolution avec les codes REM et MCNPX.

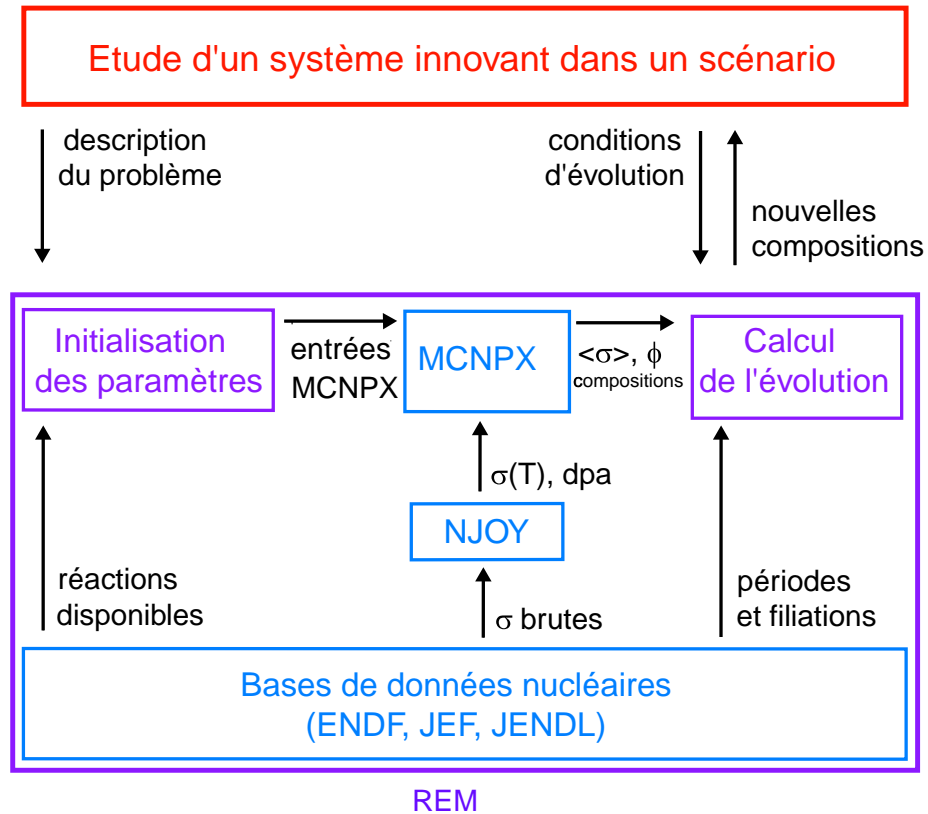


FIG. A.3 – Représentation schématique du couplage entre MCNPX et le code REM.

Annexe B

Etude analytique du système formé par deux coquilles couplées

Dans cette annexe, nous avons souhaité donner une explication quantitative au modèle simple présenté dans le chapitre 2 et formé de deux coquilles couplées constituées de ^{239}Pu . Le nombre de fissions (N_{fiss}) induites par neutron source dans la première coquille est donné d'après la relation (1.33) par :

$$N_{fiss} = \frac{1}{\nu_{coqint}} \frac{k_{scoqint}}{1 - k_{scoqint}} \quad (\text{B.1})$$

avec ν_{coqint} , le nombre moyen de neutrons émis par fission dans la coquille interne.

Ainsi, le nombre de neutrons sortant de la première coquille est donné par neutron source :

$$N_0 = \frac{1}{1 - k_{scoqint}} \left(1 - \frac{k_{scoqint}}{\nu_{coqint}} \alpha_{coqint} \right) \quad (\text{B.2})$$

avec $\alpha_{coqint} = \frac{\sigma_{abs}}{\sigma_{fiss}}$, le nombre de neutrons absorbés pour produire une fission si l'on tient compte des captures (n, γ) dans le plutonium dans la coquille interne.

Le nombre de neutrons atteignant la deuxième coquille est :

$$N_1 = P_{coqint \rightarrow coqext} N_0 \quad (\text{B.3})$$

avec $P_{coqint \rightarrow coqext}$ la probabilité des neutrons de passer de la coquille interne à la coquille externe. Dans le cas du vide, cette probabilité est égale à 1.

Avec le même raisonnement que pour la coquille interne, le nombre de neutrons multipliés dans la coquille externe est donné par :

$$N_2 = \frac{1}{1 - k_{scoqext}} \left(1 - \frac{k_{scoqext}}{\nu_{coqext}} \alpha_{coqext} \right) N_1 \quad (\text{B.4})$$

Dans le cas de deux coquilles constituées d'un même matériau et pour des spectres en énergie identiques dans les 2 coquilles, on a $\alpha_{coqint} = \alpha_{coqext}$ et $\nu_{coqint} = \nu_{coqext}$.

Dans notre cas, les spectres en énergie dans les deux coquilles sont effectivement semblables car les matériaux sont identiques et les épaisseurs des coquilles du même ordre de grandeur.

Le nombre de neutrons sortant par la surface interne de la coquille externe (une partie des neutrons N_2 vont s'échapper à l'extérieur) est donné par :

$$N_3 = P_{int}N_2 \quad (B.5)$$

La probabilité P_{int} apparaît comme fortement dépendante de l'épaisseur de la coquille externe. En effet, si l'épaisseur est faible, les surfaces intérieure et extérieure de la coquille externe ont des dimensions sensiblement identiques. Par contre si l'épaisseur est importante la surface d'émission externe sera beaucoup plus importante que la surface interne. Par ailleurs, si l'épaisseur est inférieure ou du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des neutrons dans le plutonium, les neutrons traverseront la coquille en interagissant faiblement. On peut estimer P_{int} comme le rapport de la surface intérieure sur la surface totale de la coquille externe soit :

$$P_{int} \approx \frac{R_{ext}^2}{(R_{ext} + ep_{ext})^2 + R_{ext}^2} \quad (B.6)$$

avec R_{ext} le rayon intérieur de la coquille externe et ep_{ext} l'épaisseur de la coquille externe. Le nombre de neutrons retournant vers la première coquille est donné par :

$$N_{re1} = P_{coqext \rightarrow coqint}N_3 \quad (B.7)$$

avec $P_{coqext \rightarrow coqint}$ la probabilité pour un neutron de retourner de la coquille externe (émis par la surface intérieure) vers la coquille interne.

N_{re1} est le nombre de neutrons retournant dans la coquille interne après avoir été multipliés une première fois dans le système formé par les deux coquilles.

$$N_{re1} = P_{tot}G_{coqint}G_{coqext}\left(1 - \frac{k_{scoqext}}{\nu_{coqext}}\alpha_{scoqext}\right)\left(1 - \frac{k_{scoqint}}{\nu_{coqint}}\alpha_{scoqint}\right) \quad (B.8)$$

avec :

$$P_{tot} = P_{coqint \rightarrow coqext}P_{int}P_{coqext \rightarrow coqint} \quad (B.9)$$

$$G_{coqint} = \frac{1}{1 - k_{scoqint}} \quad (B.10)$$

$$G_{coqext} = \frac{1}{1 - k_{scoqext}} \quad (B.11)$$

G_{coqint} et G_{coqext} sont respectivement les gains des coquilles interne et externe.

On pose :

$$N_{re1} = KG \quad (\text{B.12})$$

avec :

$$K = P_{tot} \left(1 - \frac{k_{scoqext}}{\nu_{coqext}} \alpha_{coqext}\right) \left(1 - \frac{k_{scoqint}}{\nu_{coqint}} \alpha_{coqint}\right) \quad (\text{B.13})$$

$$G = G_{coqint} G_{coqext} \quad (\text{B.14})$$

Les neutrons N_{re1} sont vus comme des “neutrons source” pour la coquille interne seule.

Plus le nombre total de neutrons revenant dans la coquille centrale est important et plus le couplage entre les coquilles est fort.

Une estimation géométrique de la probabilité $P_{coqext \rightarrow coqint}$ peut être donnée à partir de l’angle solide Ω formé par la coquille interne pour un neutron quittant la surface intérieure de la coquille externe. Cette probabilité notée $P(R_{int}, R_{ext})$ s’écrit :

$$P_{coq2 \rightarrow coq1} = P(R_{int}, R_{ext}) = \frac{\Omega}{2\pi R_{ext}^2} = 1 - \cos(\arcsin(\frac{R_{int}}{R_{ext}})) \quad (\text{B.15})$$

Ω est défini par :

$$\Omega = 2\pi R_{ext}^2 (1 - \cos(\arcsin(\frac{R_{int}}{R_{ext}}))) \quad (\text{B.16})$$

avec R_{ext} le rayon intérieur de la coquille externe et R_{int} le rayon extérieur de la coquille interne.

Pour illustrer le calcul précédent, nous donnons une application numérique pour une source de 2 MeV et 2 coquilles de ^{239}Pu , avec des écarts de 0.12 m et de 89.90 m entre les coquilles. Le k_{eff} global est fixé à 0.95.

On considère que pour le ^{239}Pu :

- $\nu_{coqint} = \nu_{coqext} = 2.90$ neutrons par fission
- $\sigma_{abs} = 2.467$ barns
- $\sigma_{fiss} = 1.869$ barns
- soit $\alpha_{coqint} = \alpha_{coqext} = 1.32$

Les différents paramètres du système pour les deux écarts entre les coquilles considérées sont rassemblés dans le tableau B.1.

Les valeurs de K obtenues pour les deux exemples (tableau B.1) caractérisent l’effet de couplage entre les deux coquilles. Pour un faible écart, le couplage est important ($K = 0.183$) alors que pour un écart important le couplage est faible ($K = 1,035 \cdot 10^{-7}$). Ce couplage est

Ecart entre les coquilles (m)	0.12	89.9
Rayon extérieur (m)	0.1	0.1
Rayon intérieur (m)	0.22	90
Epaisseur coquille intérieure(cm)	2.09	2.09
Epaisseur coquille extérieure (cm)	1.75	1.53
$k_{scoqint}$	0.720	0.935
$k_{scoqext}$	0.723	0.920
k_s global	0.958	0.992
k_{eff} global	0.950	0.950
$P_{coqint \rightarrow coqext}$	1.	1.
$P_{coqext \rightarrow coqint}$	0.109	$6,2 \cdot 10^{-7}$
P_{int}	0.42	0.5
K	0.183	$1,035 \cdot 10^{-7}$

TAB. B.1 – Paramètres géométriques et neutroniques du système formé par des coquilles de ^{239}Pu pour deux écarts différents.

géométrique puisque c'est essentiellement la valeur de $P_{coq2 \rightarrow coq1}$, qui donne la probabilité qu'a un neutron émis de la surface intérieure de la coquille externe de retourner dans la coquille interne, qui détermine la valeur de K.

Annexe C

Valeurs utilisées du coefficient de conversion $h^*(10)$

Energie (eV)	$h^*(10)$ (Sv.cm ²)	Energie (eV)	$h^*(10)$ (Sv.cm ²)
1.00e-03	6.6e-12	1.2e+06	425.e-12
1.00e-02	9.0e-12	2.0e+06	420.e-12
2.53e-02	10.6e-12	3.0e+06	412.e-12
1.00e-01	12.9e-12	4.0e+06	408.e-12
2.00e-01	13.5e-12	5.0e+06	405.e-12
5.00e-01	13.6e-12	6.0e+06	400.e-12
1.00	13.3e-12	7.0e+06	405.e-12
2.00	12.9e-12	8.0e+06	409.e-12
5.00	12.0e-12	9.0e+06	420.e-12
1.00e+01	11.3e-12	1.00e+07	440.e-12
2.00e+01	10.6e-12	1.20e+07	480.e-12
5.00e+01	9.9e-12	1.40e+07	520.e-12
1.00e+02	9.4e-12	1.50e+07	540.e-12
2.00e+02	8.9e-12	1.60e+07	555.e-12
5.00e+02	8.3e-12	1.80e+07	570.e-12
1.00e+03	7.9e-12	2.00e+07	591.e-12
2.00e+03	7.7e-12	2.50e+07	586.e-12
5.00e+03	8.0e-12	3.00e+07	586.e-12
1.00e+04	10.5e-12	4.00e+07	528.e-12
2.00e+04	16.6e-12	5.00e+07	440.e-12
3.00e+04	23.7e-12	6.00e+07	377.e-12
5.00e+04	41.1e-12	8.00e+07	320.e-12
7.00e+04	60.0e-12	1.00e+08	300.e-12
1.00e+05	88.0e-12	1.50e+08	285.e-12
1.50e+05	132.e-12	2.00e+08	285.e-12
2.00e+05	170.e-12	3.00e+08	306.e-12
3.00e+05	233.e-12	4.00e+08	349.e-12
5.00e+05	322.e-12	5.00e+08	420.e-12
7.00e+05	375.e-12	6.00e+08	487.e-12
9.00e+05	400.e-12	8.00e+08	580.e-12
1.0e+06	416.e-12	1.0e+09	647.e-12

TAB. C.1 – Valeurs utilisées du coefficient de conversion $h^*(10)$

Lexique - Notations

ADS : Accelerator Driven System

ADT : Accelerator Driven Transmuter

AM : Actinides Mineurs (neptunium, américium, curium et les éléments suivants)

AMSTER : Actinide Molten Salt TransmutER

ANDRA : Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs

APT : Accelerator Production of Tritium

ATALANTE : ATelier Alpha et Laboratoires pour les ANalyses de Transuraniens et Etudes de retraitement situé au Centre d'Etudes Nucléaires de Marcoule

ATW : Accelerator Transmutation of Waste

Bq : Becquerel

CEA : Commissariat à l'Energie Atomique

CERN : European Organization for Nuclear Research

CIPR : Commission Internationale de Protection Radiologique

COGEMA : COmpagnie GEnérale des MATières nucléaires

CNAM : Conservatoire National des Arts et Métiers

CNE : Commission Nationale d'Evaluation

CNRS : Centre National de la Recherche Scientifique

DOE : Department Of Energy

EDF : Electricité de France

ENDF : Evaluated Nuclear Data Files

ENSPG : Ecole Nationale Supérieure de Physique de Grenoble

eV : électron Volt ($1.60 \cdot 10^{-19}$ V)

GEDEON : GESTion des DEchets par des Options Nouvelles

GeV : Giga électron Volt ($1.60 \cdot 10^{-10}$ V)

GWé : Giga Watt électrique (10^9 W)

GWj : Giga Watt jour

HETC : High Energy Transport Code

IAEA : International Atomic Energy Agency

ICRP : International Commission on Radiation Protection

INSTN : Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires

ISN : Institut des Sciences Nucléaires

JEF : Joint Evaluated File

JENDL : Japanese Evaluated Nuclear Data Library

k_{eff} : facteur de multiplication effectif

keV : kilo électron Volt ($1.60 \cdot 10^{-16}$ V)

k_{∞} : facteur de multiplication infini
 k_s : facteur de multiplication source
 LAHET : Los Alamos High Energy Transport Code
 LCS : LAHET Code System
 LEDC : Laboratoire d'Etudes et Développements de Cœurs
 LLFP's : Long Lived Fission Products
 NL : Noyaux Lourds (ensemble des noyaux de numéro atomique supérieur ou égal à 90 (thorium))
 mA : milli-Ampère
 MCNP : Monte Carlo N Particle Transport Code
 MCNPX : Monte Carlo N Particle eXtended Transport Code
 MeV : Méga électron Volt ($1.60.10^{-13}$ V)
 MOX : Mixed Oxide
 MUSE : MUltiplication d'une Source Externe
 MWé : Méga Watt électrique (10^6 W)
 MWth : Méga Watt thermique
 ORNL : Oak Ridge National Laboratory
 pcm : pour cent mille
 ppm : partie par million
 PUREX : Plutonium-Uranium Refining by EXtraction
 PF : Produits de Fission
 REM : Règles pour l'Evolution avec MCNPX
 REP : Réacteurs à Eau Pressurisée
 RNR : Réacteurs à Neutrons Rapides
 RSF : Réacteurs à Sels Fondus
 RSICC : Radiation Safety Information Computational Center
 SANEX : Selective ActiNides EXtraction
 Sv : Sievert
 SPRC : Service de Physique des Réacteurs et du Cycle
 SPARTE : Spallation Ralentissement Transport Evolution
 TARC : Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing
 TFA : Très Faible Activité
 TRU : Transuraniens (les noyaux de numéro atomique supérieur à 92 (au delà de l'uranium))
 TH : Tubes Hexagonaux
 UOX : Uranium OXide
 XADS : eXperimental Accelerator Driven System
 XADT : eXperimental Accelerator Driven Transmuter

Bibliographie

- [1] Journal Officiel. Loi n° 91-1381 du 30/12/1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs.
- [2] GEDEON. Gestion des DEchets par des Options Nouvelles. <http://www.gedeon.prd.fr/>.
- [3] C. Bataille. Rapport sur les possibilités d'entreposage à long terme des combustibles nucléaires irradiés. Rapport du Sénat n° 347 du 30 mai 2001.
- [4] P. Girard, Y. Marignac et J. Tassart. Mission d'évaluation de la filière nucléaire. Le parc nucléaire actuel. Mars 2000.
- [5] J.P. Schapira. Transmutation des radionucléides à vie longue: principes, méthodes, réacteurs, accélérateurs, Cours de DEA Paris XI, Grenoble I, Tours, INSTN.
- [6] C. Bataille, R. Galley. L'aval du cycle nucléaire, Rapport de l'Office Parlementaire des Choix Scientifiques et Technologiques n°612 (1997/1998).
- [7] C.D. Bowman et al. Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an Accelerator-Driven Intense Thermal Neutron Source, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A320, 336-367 (1992).
- [8] A report to congress. A Roadmap for Developing Accelerator Transmutation of Waste (ATW) Technology. DOE/RW-0519 October 1999.
- [9] C. Rubbia et al. Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier, CERN/AT/95-44(ET) (1995).
- [10] J.M. Lagniel. Accélérateurs de haute intensité. Annales de physique volume 25. Production d'énergie nucléaire et traitement des déchets. E. Suraud, Ed. 2000.
- [11] Institut des Sciences Nucléaires. <http://isnwww.in2p3.fr/reacteurs-hybrides/french/reacteurs-hybrides.html>.
- [12] R. Soule and al. Subcriticality and LLFP's Transmutation Experiments in the Presence of an External Neutron Source in the MASURCA Facility ; the MUSE Experiments. Transactions of the American Nuclear Society, vol 83, p 324-325 (2000).
- [13] D. Heuer et al. Proposal for an Accelerator Driven Subcritical Reactor Pilot Unit, International Conference on Future Nuclear Systems (GLOBAL 97), Yokohama (Japon) Proceedings Vol.1 , 440 (1997).

- [14] J.F. Briesmeister. MCNP - A General Monte Carlo N Particle Transport Code, Los Alamos Laboratory report LA-12625-M (1997).
- [15] Laurie S. Waters, Editor. MCNPX Users's Manual Version 2.1.5. TPO-E83-G-UG-X-00001 (1999).
- [16] Nuclear Energy Agency. Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation. Status and Assesment Report (1999).
- [17] B. Boullis. Retraitement et séparation des radionucléides à vie longue. Les déchets nucléaires, un dossier scientifique. Société Française de Physique. Ed R. Turlay (1997).
- [18] Commission Nationale d'Evaluation relative aux recherches sur la gestion des déchets nucléaires. Rapport d'évaluation n°7 (juin 2001).
- [19] Commission Nationale d'Evaluation relative aux recherches sur la gestion des déchets nucléaires. Rapport d'évaluation n°6 (juin 2000).
- [20] M. Salvatores et A. Zaetta. Transmutation: physique et stratégie, dans "Les déchets nucléaires", ed. R Turlay (1997).
- [21] H. Bottolier-Curtet et al. Scénarios CNE: systèmes innovants, caractérisation à l'équilibre, Note technique CEA SPRC-LEDC-00-419.
- [22] M. Salvatores et al. The Neutronic Potential of Nuclear Power for Long-Term Radioactivity Risk Reduction, Progress in Nuclear Energy, Vol 32 471-475 (1998).
- [23] S. David. Thèse de doctorat. Capacité des réacteurs hybrides au plomb pour la production d'énergie et l'incinération avec multirecyclage des combustibles, Evolution des paramètres physiques, Radiotoxicités induites. Université Joseph Fourier - Grenoble I. ISN 99-27 (mars 1999).
- [24] H. Nifenecker et al. Basics of Accelerator Driven Subcritical Reactors. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 463 (2001) 428-467.
- [25] F. Lelièvre. Thèse de doctorat. Stratégies pour l'incinération de déchets nucléaires dans les réacteurs hybrides. Université Paris XI Orsay (décembre 1998).
- [26] K.O. Ott and R.J. Neuhold. Introductory Nuclear Reactor Dynamics. American Nuclear Society (1985).
- [27] Atelier GEDEON. Contrôle, sûreté du cœur des réacteurs, spécificités liées à la sous-criticité. Cadarache 20-21 septembre 2000.
- [28] J. Pierre. Le réacteur maquette MASURCA, NT/SPRC/LPEX/95-063 (1996).
- [29] M. Salvatores. Accelerator Driven Systems (ADS), Physics Principles and Specificities. Proceedings of the Workshop Innovative Options in the Field of Nuclear Fission Energy. April 1998 - Les Houches (France).

- [30] B. Carlucci. Proposal for a Gas-Cooled ADS Demonstrator. ADTTA'99, Proceedings of the 3rd International Conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies and Applications, 7-11 June 1999, Praha (Czech Republic).
- [31] Technical Working Group. Interim Report of the Technical Working Group on Accelerator Driven Sub-Critical Systems, October 1998.
- [32] Groupe cœur - CEA/CNRS/CNAM/Framatome ANP. Livre blanc pour le cœur du démonstrateur (2000). CEA NT SPRC/LEDC 2000/440.
- [33] S. Andriamongo and al. Experimental Determination of the Energy Generated in Nuclear Cascades by High Energy Beam. Physics Letter B348 697-709 (1995).
- [34] Y. Poitevin and al. Design and Limitations of a Pb-Bi Spallation Module for an Hybrid System Dedicated to Waste Incineration. DMT/SERMA/LCA/RT/99-2651/A (1999).
- [35] B. Carlucci, G. L. Fiorini and C. Rodriguez. Preliminary Safety Analysis of the Gas-Cooled ADS Concept. IAEA Workshop on Gas-Cooled Reactors, July 2000.
- [36] International Atomic Energy Agency. <http://www.iaea.org/inis/aws/htgr/>.
- [37] D. Apretna. Etude de la filière des réacteurs à haute température. Stage de fin d'étude de l'ENSPG (2001) au sein de la division recherche et développement d'EDF Pôle Industrie.
- [38] The European Technical Working Group on ADS. A European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems for Nuclear Waste Incineration (April 2001).
- [39] Coordination CEA-CNRS. Dossier de motivation pour un démonstrateur (janvier 2001).
- [40] B. Carlucci, D. Verrier. Communication privée.
- [41] O. Guéton, G. Ritter. Première approche pour la définition d'une image de référence basée sur des critères de sûreté pour un système hybride incinérateur. CEA NT SPRC/LEDC 99-419.
- [42] Atelier GEDEON. Quel accélérateur pour quel DEMO? Aix-en-Provence 25-26 novembre 1999.
- [43] H. Daniel and al. Subcritical Fission Reactor Driven by the Low Power Accelerator, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 373, 131-134 (1996).
- [44] S.B. Degweker and al. Accelerator Driven Sub-Critical Systems with Enhanced Neutron Multiplication, Annals of Nuclear Energy 26 (1999) 123-140.
- [45] S.B. Degweker and al. Analysis of a High Gain Energy Amplifier Based on the Way Coupled Booster Reactor Concept, International Meeting on Accelerator Driven Systems, Moscow, Oct 11-16, 1999.
- [46] A.V. Sannikov et E.N. Savitskaya. Ambient Dose Equivalent Conversion Factors for High Energy Neutrons based on the New ICRP Recommendations, Submitted to the 8th Symposium on Neutron Dosimetry, Paris, 13-17 November 1995.

- [47] B. R. L. Siebert et H. Schuhmacher. Quality Factors, Ambient and Personal Dose Equivalent for Neutrons, based on the New ICRP Stopping Power Data for Protons and Alpha Particles, Radiation Protection Dosimetry Vol 58, No. 3. pp. 177-183 (1995).
- [48] Commission Internationale de Protection Radiologique Publication 60. Recommandations 1990 de la Commission Internationale de Protection Radiologique, Pergamon Press 1990.
- [49] A.V. Sannikov et E.N. Savitskaya. Ambient Dose and Ambient Dose Equivalent Conversion Factors for High Energy Neutrons, CERN/TIS-RP/93-14 (October 1993).
- [50] A. Ferrari et M. Pelliccioni. Fluence to Dose Equivalent Conversion data and Effective Quality Factors for High Energy Neutrons, Radiation Protection Dosimetry Vol 76, N°. 4. pp. 215-224 (1998).
- [51] J. Schapiro. A Guide for Scientists and Physicians, Second Edition, Cambridge, Harvard University Press (1981).
- [52] D. Blanc. Les rayonnements ionisants, détection, dosimétrie, spectrométrie, deuxième édition, MASSON (1997).
- [53] R. Barjon. Physique des réacteurs de puissance. Institut des Sciences Nucléaires (Grenoble) 1975.
- [54] J. Bussac, P. Reuss. Traité de neutronique. Collection enseignement des sciences. Hermann.
- [55] M. Soutif. Physique neutronique, Presse universitaire de France, (1962).
- [56] D. Kerdraon et al. Characterization and Extrapolation of a Conceptual Experimental Accelerator Driven System, submitted to Progress in Nuclear Energy (2001).
- [57] B. Bernardin. Une nouvelle approche pour les systèmes dédiés à la transmutation: le réacteur à bêta compensé. CEA NT SERSI/ECP 99/3012.
- [58] NJOY 97.0. Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B-VI Data. RSICC CODE PACKAGE PSR-368.
- [59] R.E. MacFarlane. New Thermal Neutron Scattering Files for ENDF/B-VI, Release 2. LA-12639-MS (ENDF 356) (March 1994).
- [60] P. Reuss. Base de neutronique: coefficients de réactivité dans les réacteurs nucléaires. Annales de physique volume 25. Production d'énergie nucléaire et traitement des déchets. E. Suraud, Ed. (2000).
- [61] J. Bergeron, J.P. Schapira, A. Simon, J.B. Thomas. Mission d'évaluation économique de la filière nucléaire. La prospective technologique de la filière nucléaire (juin 2000).
- [62] T.H. Pigford. Specific Features of Thorium Cycles as Compared to Uranium Cycles, Ecole de physique des Houches, Innovative Options in the Field of Nuclear Fission Energy, April 1998, Les Houches.
- [63] Le cycle du thorium, Clefs CEA 38 (1998).

- [64] F. Gunsing and al. Measurement of the Neutron Total Cross Section of ^{99}Tc in the Energy Range from 3 to 600 eV. International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, 1997.
- [65] Collaboration TARC (Porte parole C. Rubbia). Experimental Verification of Neutron Phenomenology in Lead and Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing in Accelerator Driven Systems, Physical Review Letters.
- [66] G. Ritter, M. Valade, M. Delpech, M. Salvatores. Analyse neutronique d'un système hybride de démonstration. NT - SPRC/LEDC/98-414 (juin 1999).
- [67] J.R. Lamarsh. Introduction to Nuclear Engineering. Addison-Wesley Publishing Company (1975).
- [68] E. Belle. Caractérisation du transport de neutrons de spallation dans un grand volume de plomb, mesures de flux et de taux de transmutation différentiels, Thèse de doctorat (Université Joseph Fourier) ISN 98-71 (1998).
- [69] T. Wakabayashi. Ensemble pour la transmutation d'une matière radioactive à longue durée de vie et cœur de réacteur chargé de tels ensembles. Brevet d'invention du Japan Nuclear Cycle Development Institute. n° de publication 2 784 220.
- [70] H. Nifenecker et G. Ozounian. Le stockage des déchets nucléaires en site profond. A paraître.
- [71] L.H. Baetsle. Impact of Fission Product Partitioning and Transmutation of ^{237}Np , ^{129}I and ^{99}Tc on Waste Disposal Strategies. Proceedings of the First International Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Separation and Transmutation. Mito, Japan (1990).
- [72] K. Abrahams. Minimizing the Integrated Collective Radiation Dose and the Transmutation of Long-Lived Nuclear Waste. Paul Sherrer Institute Meeting on Accelerator Based Transmutation. Wuerenlingen 24-26 mars 1992.
- [73] A. Nuttin et al. Comparison of Thorium Fuel Cycles Based on Fast Spectrum Solid Fuel Subcritical Systems or Graphite-Moderated Molten Salt Reactors. International Conference on Future Nuclear Systems (GLOBAL 2001), Paris.
- [74] Atelier GEDEON. Molten Salts Concepts and Key Issues: Revisiting an Option for the Future of Nuclear Power. Avignon 16-17 mars 2000.
- [75] D. Lecarpentier. Thèse de doctorat. Contribution aux travaux sur la transmutation des déchets nucléaires voie des réacteurs à sel fondu: le concept AMSTER, aspects physiques et sûreté. Conservatoire National des Arts et Métiers - Paris (juin 2001).
- [76] J.D. Schneider. APT Accelerator Technology, Proc. Conf. *LINAC96*, p22.
- [77] M.B. Chadwick. Cross Section Evaluations to 150 MeV for Accelerator-Driven Systems and Implementation in MCNPX, Nuclear Science Engineering 131, Number 3 (March 1999) 293.

- [78] R.E. Prael, H. Lichtenstein. User Guide to LCS: The LAHET Code System. Los Alamos National Laboratory (LANL/USA), Revised September 15, 1989.
- [79] Radiation Shielding Information Center. HETC Monte Carlo High-Energy Nucleon-Meson Transport Code, Report CCC-178, Oak Ridge National Laboratory (August 1977).
- [80] Atelier GEDEON. Le système de codes SPARTE et sa validation expérimentale. Lyon 4-5 octobre 1999.
- [81] A. Fassó et al. Intermediate Energy Nuclear Data: Models and Codes, Specialists' Meeting, Issy les Molineaux (France) (1994).
- [82] C. Rubbia et al. A high Resolution Spallation Driven Facility at the CERN-PS to Measure Neutron Cross Sections in the Interval from 1 eV to 250 MeV, CERN/LHC/98-02(EET) (1998).
- [83] L. Perrot. Thèse de doctorat. Validation de bases de données de sections efficaces par l'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb entre 0,1 eV et 30 keV. Méthodologie-Résultats. Université Joseph Fourier - Grenoble I (décembre 2001).
- [84] H.W. Bertini. Phys. Rev. 188(1969), p 1711..
- [85] Y. Yariv, Z. Fraenkel. Phys. Rev. C, 20 (1979), p 2227.
- [86] Y. Yariv, Z. Fraenkel. Phys. Rev. C, 24 (1981), p 488.
- [87] S.G. Masnik, V.D. Toneev. MODEX - The program for Calculation of the Energy Spectra of Particles Emitted in the Reactions of Pre-Equilibrium and Equilibrium Statistical Decays, Communication JINR P4-8417, Dubna, 1974.
- [88] C. Toccoli. Simulation de la spallation: analyse et test des modèles nucléaires. Thèse de doctorat. Université de Paris-sud (avril 2000).
- [89] H. Nifenecker et al. Hybrid Nuclear Reactors, Progress in Particle and Nuclear Physics (1999).
- [90] D. Kerdraon et al. Eléments de représentativité d'un démonstrateur de réacteur hybride. Rapport interne ISN 00.127 (novembre 2000).
- [91] F. Carminati et al. An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production driven by a Particle Beam Accelerator, CERN/AT/93-47 (1994).

Table des figures

1.1	Evolution de la puissance du parc électro-nucléaire français d'après la référence [4].	10
1.2	Cycle du combustible du parc électro-nucléaire français pour l'année 1999 pour une production de 390 TWh et un taux de combustion moyen de 33 GWj/t d'après [4].	11
1.3	Evolution des quantités cumulées de combustibles UOX (a) et MOX (U/Pu) (b) entreposés du parc électro-nucléaire français d'après [4].	13
1.4	Evolution des quantités cumulées de plutonium contenu au sein des combustibles de type UOX et MOX entreposés d'après [4].	14
1.5	Evolution des quantités cumulées de déchets B et C conditionnés d'après [4]. . .	14
1.6	Schéma de référence pour les séparations du combustible irradié d'après la référence [18].	17
1.7	Coupe verticale de l'amplificateur d'énergie issue de la référence [9].	18
1.8	Convergence des facteurs k_i vers k_{eff} dans le cas du démonstrateur de 100 MWth avec du combustible MOX (UO_2 - PuO_2) enrichi à 24.1 % de plutonium. La convergence des k_i vers k_{eff} est atteinte à partir de la génération $n_0=3$ d'après nos simulations.	25
1.9	Spectre en énergie et en temps des neutrons source. Le spectre énergétique des neutrons évolue en quelques microsecondes lors de la traversée du milieu formé par la cible et le cœur. Le maximum du spectre passe de quelques MeV (maximum d'un spectre de spallation) à quelques keV par ralentissement.	27
1.10	Coupe du démonstrateur proposé par la société Framatome ANP.	31
1.11	Eclaté du module de spallation proposé par la société Framatome ANP.	33
2.1	Représentation de l'insertion du module de spallation au sein du maillage hexagonal d'assemblages, avec en pointillé les assemblages retirés.	39
2.2	Evolution du rapport $R = \frac{Surface\ perdue}{Surface\ du\ module\ de\ spallation}$ (voir texte) en fonction du pas des tubes hexagonaux (TH).	39
2.3	Modélisation des tubes hexagonaux pour 4 couches de crayons ($n=4$).	40

2.4	Evolution du nombre de fissions induites par neutron source (a) et de la hauteur du combustible (b) à masse de combustible constante en fonction du rayon extérieur du cœur. Les courbes servent à guider l'œil.	42
2.5	Comparaison des dimensions d'un cœur orthocylindrique et d'un cœur qui minimise la surface de fuite en fonction du rayon extérieur.	44
2.6	Evolution du k_{eff} en fonction de l'épaisseur du réflecteur (en nickel naturel et en acier inoxydable "Z6CNDT17-13").	46
2.7	Sections efficaces (n, γ) de l'acier inoxydable "Z6CNDT17-13" (a) et du nickel naturel (b) issues de la base de données nucléaires ENDF/B-VI.	48
2.8	Influence d'un réflecteur en acier de 1 mètre d'épaisseur sur les sections efficaces moyennes de fission du ^{239}Pu (a) et des ^{241}Am et ^{243}Am (b) dans le plan médian du cœur en fonction du rayon.	49
2.9	Coupe horizontale du démonstrateur de référence simulé.	50
2.10	Comparaison des captures radiatives (n, γ) pour les neutrons source et pour l'ensemble des neutrons dans l'ensemble du cœur.	51
2.11	Coupe verticale de la cible fontaine sans fenêtre.	55
2.12	Coupe horizontale du cœur (assemblages combustibles et réflecteurs) avec la cible fontaine sans fenêtre.	56
2.13	Système de deux coquilles sphériques constituées de plutonium 239 séparées par du vide avec une source ponctuelle centrée.	60
2.14	Evolution du k_s à k_{eff} constant en fonction de l'écart entre les coquilles pour différents rayons de la coquille interne.	61
2.15	Distribution des fissions entre les coquilles une fois la source stabilisée pour différents écarts, avec la source de 2 MeV centrée et un rayon de la coquille interne de 0.5 mètre.	62
2.16	Evolution des valeurs de k_{eff} et k_s des coquilles interne (a) et externe (b) pour un k_{eff} global de 0.95, un rayon externe de la sphère interne de 0.5 m, et une source de 2 MeV centrée.	63
2.17	Visualisation de l'emplacement de l'anneau combustible entourant le tube contenant la cible de spallation.	64
2.18	Evolution de φ^* (a) pour un k_{eff} global de 0.95 et de la puissance déposée (b) dans l'anneau U/Pu enrichi à 30 % et 100 % de plutonium en fonction de l'épaisseur de l'anneau.	67
2.19	Spectre énergétique des neutrons sur la surface latérale du module de spallation.	68
2.20	Evolution de la composition du cylindre U/Pu pour une concentration de 30 % et 100 % de plutonium.	69
2.21	Facteur de conversion $h^*(10)$	71

2.22 Flux moyens pour l'ensemble des neutrons (a) et pour les neutrons de spallation (b) dans la cellule cœur et dans la cellule réflecteur.	73
2.23 Evolution du flux au-dessus du cœur à l'intérieur de l'enceinte.	74
2.24 Flux à l'extérieur de l'enceinte par décade d'énergie.	74
2.25 Débit de dose à l'extérieur de l'enceinte par décade d'énergie.	75
3.1 Evolution du k_{eff} (a) et de l'intensité du faisceau de protons (b) sur trois ans. .	80
3.2 Evolution du spectre énergétique des neutrons dans le combustible MOX (U/Pu). 80	
3.3 Evolution des compositions des Transuraniens (TRU), des Actinides Mineurs (AM) et des Produits de fission (PF) (a) des Noyaux Lourds (NL) et de l' ^{238}U (b) dans le cas d'un combustible MOX (U/Pu) enrichi avec 24.1 % de plutonium. 81	
3.4 Evolution du vecteur isotopique du Pu pour un combustible MOX (U/Pu) enrichi à 24.1 % de plutonium.	82
3.5 Evolution de la section efficace moyenne de capture des produits de fission (PF). 83	
3.6 Evolution des compositions des principaux actinides mineurs du combustible MOX (U/Pu) enrichi à 24.1 % de plutonium.	84
3.7 Influence de la température sur la section efficace moyenne de capture de l' ^{238}U au cours de l'évolution pour des températures de combustible de 300, 900, 1200 et 1600 K.	86
3.8 Evolution du k_{eff} d'un combustible oxyde à base d'actinides mineurs sur 6 ans. . 89	
3.9 Evolution des masses de noyaux lourds (NL), de transuraniens (TRU) et d'acti- nides mineurs (AM).	90
3.10 Evolution des compositions du plutonium (a) et de l'américium (b).	90
3.11 Evolution des isotopes du curium.	91
3.12 Schéma du cycle des combustibles à base d'actinides mineurs envisagés pour le démonstrateur.	93
3.13 Comparaison de l'évolution du k_{eff} pour les deux combustibles à base d'actinides mineurs envisagés et pour le combustible MOX (U/Pu) de référence.	94
3.14 Evolution des quantités globales d'actinides mineurs (AM), de noyaux lourds (NL) et de transuraniens (TRU) pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).	96
3.15 Evolution des compositions des isotopes du plutonium pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).	97
3.16 Evolution des compositions des isotopes de l'américium pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).	97
3.17 Evolution des compositions des isotopes du curium pour les combustibles 1 (a) et 2 (b).	98

3.18	Coupe horizontale du cœur du démonstrateur chargé avec un combustible MOX (U/Pu) enrichi à 21 % en plutonium et six assemblages à base du combustible 2.	99
3.19	Comparaison de l'évolution de k_{eff} pour le cœur de référence (combustible de MOX (U/Pu) enrichi à 24 % en plutonium) et le cœur avec les six assemblages à base d'actinides mineurs.	101
3.20	Profil de puissance linéique dans le plan médian du cœur suivant le rayon au niveau d'un assemblage combustible à base d'actinides mineurs.	101
3.21	Comparaison du spectre énergétique des neutrons avec le combustible des assemblages MOX (U/Pu), avec le combustible à base d'actinides mineurs avec six assemblages insérés et un cœur complet.	102
3.22	Evolution des compositions de l'américium (a) et du curium (b).	104
3.23	Evolution de la composition isotopique du plutonium dans les 6 assemblages à base d'actinides mineurs.	105
3.24	Comparaison des spectres énergétiques des neutrons pour un cœur entier avec un combustible constitué d'actinides mineurs et un cœur formé d'assemblages MOX (U/Pu) et de six assemblages d'actinides mineurs.	105
3.25	Evolution des facteurs de multiplication k_{eff} et k_s pour un combustible thorium-plutonium enrichi à 26.75 % en Pu.	107
3.26	Evolution des masses de l' ^{233}U (a) et du ^{233}Pa (b) pour un combustible MOX thorium-plutonium enrichi à 26.75 % en Pu.	108
3.27	Evolution des masses des différents isotopes du plutonium d'un combustible MOX thorium-plutonium enrichi à 26.75 % en plutonium.	110
3.28	Evolution des masses globales de produits de fission (PF) et d'actinides mineurs (AM) d'un combustible MOX thorium-plutonium enrichi à 26.75 % en plutonium.	110
4.1	Section efficace de capture (n, γ) du ^{99}Tc	116
4.2	Evolution du flux (a) dans le réflecteur et de la section efficace moyenne de capture du ^{99}Tc pour une proportion de 0.01 % de ^{99}Tc (b) en fonction de la distance au centre du cœur.	117
4.3	Taux de réaction de capture (n, γ) du ^{99}Tc dans un réflecteur en nickel naturel de un mètre d'épaisseur en fonction de la distance au centre du cœur.	118
4.4	Section efficace de diffusion élastique du nickel naturel d'après la base ENDF/B-VI.	119
4.5	Influence de la dilution sur la demi-vie effective du ^{99}Tc dans un assemblage de nickel et dans un assemblage de plomb.	121
4.6	Evolution du taux de transmutation en fonction de la proportion de ^{99}Tc dans le nickel et dans le plomb.	122

4.7	Evolution de la section efficace moyenne de capture du ^{99}Tc dans les assemblages dédiés avec du nickel et du plomb.	123
4.8	Evolution en fonction du temps des masses de ^{99}Tc et de ^{100}Ru pour une proportion de 0.1 % de ^{99}Tc dans les 24 assemblages de nickel.	123
4.9	Comparaison du spectre énergétique des neutrons dans le combustible et dans un assemblage réflecteur en nickel avec une proportion de 0.05 % de ^{99}Tc	124
4.10	Effet d'auto-absorption : influence de la proportion de ^{99}Tc sur le spectre énergétique des neutrons dans un assemblage de nickel.	125
4.11	Valeur de k_{eff} au démarrage en fonction de la proportion de ^{99}Tc dans les 24 assemblages dédiés.	127
4.12	Evolution du taux de transmutation dans le nickel comparée avec le taux de production dans le combustible du ^{99}Tc	128
4.13	Section efficace de capture (n, γ) de l' ^{129}I issue de la base JEF-2.2.	129
4.14	Evolution du taux de capture de l' ^{129}I dans le réflecteur pour une proportion molaire de 0.0055 % de $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$ dans le nickel.	131
4.15	Evolution de la section efficace moyenne de l' ^{129}I au sein du réflecteur pour une proportion molaire de 0.0055 % de $\text{Ba}(\text{IO}_3)_2$ dans le nickel.	131
4.16	(a) Evolution de la section efficace moyenne et (b) de la demi-vie effective de l' ^{129}I en fonction de la proportion molaire d'iode dans les 24 assemblages dédiés. . . .	132
4.17	Comparaison entre le taux de production dans le combustible et de transmutation de l' ^{129}I dans le réflecteur dans les 24 assemblages dédiés en fonction de la proportion molaire d'iode.	133
5.1	Evolution du flux radial dans le plan médian en fonction du rayon du cœur pour la cible de référence (a) et la cible fontaine (b).	141
5.2	Evolution des flux axiaux à $r = 0.4$ m pour la cible de référence (a) et à $r = 0.2$ m pour la cible fontaine (b) en fonction de la hauteur du cœur.	142
5.3	Evolution des facteurs de forme axial (a) et radial (b) pour les deux cibles et pour différentes tailles de cœur.	144
5.4	Evolution de la valeur de k_∞ avec l'augmentation du rayon extérieur du cœur pour les deux cibles.	144
5.5	Influence de la sous-criticité sur la forme du flux radial dans le plan médian du cœur.	145
5.6	Coupe horizontale du cœur dans le plan médian. Mise en évidence de la zone tampon ("buffer") entre la cible de spallation et le cœur.	147
5.7	Influence d'une zone tampon ("buffer") sur la forme du flux avec cible fontaine. .	147

5.8	Influence d'une zone tampon ("buffer") et du découpage du cœur en zones de densité de crayons variables sur la forme du flux avec la cible fontaine.	149
6.1	Section efficace de fission de l'uranium 233 issue de la base ENDF/B-VI.	154
6.2	Spectre énergétique des neutrons dans les différentes zones et la couverture.	157
6.3	Evolution du k effectif (a) et de l'intensité (b) du faisceau de protons de 1 GeV.	158
6.4	Evolution des masses d' ^{233}U (a) et de ^{233}Pa (b) dans les différentes zones et la couverture.	161
6.5	Evolutions de la proportion d' ^{233}U dans les différentes zones du cœur et la couverture (a) et de la proportion totale d' ^{233}U (avec le ^{233}Pa) dans le ^{232}Th moyennée sur l'ensemble des zones du cœur et la couverture (b).	162
6.6	Evolution de la proportion d' ^{233}U au sein des différentes zones avec un déchargement basé sur la proportion dans la première zone.	164
6.7	Evolution du k effectif (a) et de l'intensité (b) du faisceau avec une gestion par zone.	166
A.1	Schématisation de la réaction de spallation avec un mécanisme à deux étapes (la cascade intranucléaire puis l'évaporation et/ou fission).	174
A.2	Représentation schématique des étapes du calcul de l'évolution avec les codes REM et MCNPX.	177
A.3	Représentation schématique du couplage entre MCNPX et le code REM.	177

Liste des tableaux

1.1	Principaux isotopes des produits de fission à vie longue ou à haute activité présents dans les déchets issus du combustible irradié, déchargé puis retraité chaque année pour l'ensemble du parc électro-nucléaire français d'après [5]. . . .	16
1.2	Principaux isotopes des actinides mineurs (Np, Am, Cm) à vie longue ou à haute activité présents dans les déchets issus du combustible irradié, déchargé puis retraité chaque année pour l'ensemble du parc électro-nucléaire français d'après [6].	16
1.3	Vecteur isotopique du MOX en fonction de l'enrichissement e ($0 \leq e \leq 0.3$). . . .	34
2.1	Caractéristiques d'un assemblage hexagonal pour un pas de 13.93 cm et 50 % d'hélium avec 3, 4 et 5 couches de crayons à l'intérieur.	41
2.2	Proportions des différents éléments présents dans l'acier optifer et dans l'acier inoxydable "Z6CNDT17-13".	45
2.3	Composition isotopique du nickel naturel.	46
2.4	Paramètres globaux du cœur avec la cible de référence.	46
2.5	Proportions volumiques des différents matériaux dans le cœur.	47
2.6	Bilan neutronique détaillé dans l'ensemble du réacteur avec la cible de référence (en caractères gras l'acier, italique et souligné la cible en plomb-bismuth et normal le combustible).	52
2.7	Influence du type de caloporteur sur le k_{eff}	54
2.8	Comparaison des caractéristiques neutroniques des cœurs avec la cible de référence et la cible fontaine.	57
2.9	Bilan neutronique détaillé du réacteur avec la cible fontaine (en caractères gras l'acier, italique et souligné la cible en plomb-bismuth et normal le combustible). .	58
2.10	Influence du module de spallation en fonction du type de cible sur le k_{eff}	59
2.11	Influence du cylindre U/Pu enrichi à 30 % et 100 % de plutonium sur le couplage source-cœur (φ^*).	65
2.12	Gain neutronique du cylindre U/Pu pour 30 % de Pu.	66

3.1	Consommation spécifique du Pu pour un combustible MOX (U/Pu) enrichi à 24.1 % de plutonium pour une évolution de 3 ans.	82
3.2	Sections efficaces moyennes de fission et de capture et rapport $\alpha = \frac{\sigma_c}{\sigma_f}$ des sections efficaces moyennes à l'instant initial et après trois ans d'irradiation du vecteur isotopique du plutonium.	83
3.3	Composition isotopique du combustible à base d'actinides mineurs (AM) 4 ans après le déchargement et au moment de son chargement après 30 ans de refroidissement en piscine (retraitement à 4 ans d'un combustible MOX (U/Pu) d'un REP 900 MWé à un taux de combustion de 43.5 GWj/t).	88
3.4	Consommation spécifique des principaux constituants du plutonium, et des actinides mineurs.	91
3.5	Sections efficaces moyennes initiales ainsi que leur rapport pour les principaux constituants du plutonium, et des actinides mineurs.	91
3.6	Vecteur isotopique des combustibles 1 et 2.	94
3.7	Flux moyen dans les assemblages MOX intérieurs et extérieurs et dans les assemblages à base d'actinides mineurs après quatre mois.	102
3.8	Masses totales des éléments présents dans les six assemblages à base d'actinides mineurs.	103
3.9	Consommations relatives pour une durée de trois ans entre un cœur complet constitué d'assemblages à base d'actinides mineurs et un cœur mixte constitué d'assemblages MOX (U/Pu) enrichi à 21 % en plutonium et six assemblages à base d'actinides mineurs.	106
3.10	Sections efficaces moyennes de fission et de capture et rapport α des principaux isotopes présents du thorium, du protactinium et de l'uranium à l'instant initial.	109
4.1	Comparaison du nombre de neutrons disponibles par fission entre un réacteur critique et un réacteur sous-critique avec un k_s fixé à 0.95.	115
4.2	Energie des principales résonances de capture (n, γ) du ^{99}Tc ainsi que leur largeur à mi-hauteur Γ_γ d'après la référence [64].	115
4.3	Principaux paramètres du ralentissement pour le nickel et le plomb d'après la référence [68].	120
4.4	Caractéristiques des assemblages hexagonaux pour un pas de 13.93 cm envisagés pour la transmutation du ^{99}Tc dans du nickel.	125
4.5	Comparaison des performances de la transmutation d'une proportion de 1 % de ^{99}Tc au sein d'une matrice en nickel naturel à l'instant initial pour différents rayons de crayons avec une configuration sans crayon dans 24 assemblages dédiés.	126

5.1	Caractéristiques neutroniques du réacteur simulé pour quantifier l'influence du niveau de sous-criticité sur la forme du flux avec la cible fontaine.	146
5.2	Caractéristiques du cœur multi-zones.	148
5.3	Comparaison des caractéristiques neutroniques du cœur de référence et du cœur à zones de densités de combustible variables.	149
6.1	Comparaison des sections efficaces moyennes de capture et de fission et des flux moyens pour les principaux isotopes du cycle thorium/uranium entre un ADS incinérateur refroidi à l'hélium et un réacteur critique à spectre thermique à sels fondus d'après la référence [73].	155
6.2	Composition isotopique du combustible à l'instant initial.	156
6.3	Masse des principaux éléments du combustible à l'instant initial.	156
6.4	Flux moyens et sections efficaces moyennes de capture et de fission du ^{232}Th , du ^{233}Pa de l' ^{233}U à l'instant initial dans les différentes zones.	157
6.5	Bilan neutronique détaillé dans l'ensemble du réacteur avec la cible de référence au démarrage en vue de la génération d' ^{233}U (en caractères gras l'acier, italique la cible et normal le combustible).	159
6.6	Composition isotopique du combustible à l'instant initial.	163
6.7	Masses des différents éléments présents à l'instant initial pour les différentes zones.163	
6.8	Composition isotopique du combustible thorium-uranium déchargé de la couverture comparé aux proportions de l'inventaire d'un combustible thorium-uranium à l'équilibre d'un réacteur à sels fondus de 2500 MWth.	165
B.1	Paramètres géométriques et neutroniques du système formé par des coquilles de ^{239}Pu pour deux écarts différents.	181
C.1	Valeurs utilisées du coefficient de conversion $h^*(10)$	183

RESUME

Les réacteurs hybrides, basés sur le couplage entre un accélérateur de particules et un cœur sous-critique via une cible de spallation, présentent des possibilités de réduction de la raditoxité des déchets de haute activité et à vie longue promis au stockage. Les différents concepts proposés ces dernières années dans la communauté scientifique montrent la nécessité de réaliser un démonstrateur. Ce travail de thèse a porté sur l'optimisation par simulation Monte Carlo à l'aide du code MCNPX, de la neutronique d'un tel système dans le but de réaliser un réacteur pilote. Tout d'abord, nous avons indiqué les principales caractéristiques neutroniques d'un réacteur hybride avant de présenter le concept de démonstrateur refroidi au gaz basé sur le remontage effectué par la société Framatome ANP. Nous avons caractérisé puis optimisé la neutronique à travers la géométrie et les matériaux utilisés pour ce démonstrateur. Dans le cadre de l'incinération des actinides mineurs, nous avons calculé l'évolution des combustibles envisageables suivant les phases de démonstration prévues. Les grandeurs liées à l'incinération des actinides mineurs sont rapportées. En vue de la transmutation du ^{99}Tc et de l' ^{129}I , nous avons calculé les temps caractéristiques et les taux de transmutation à l'équilibre. D'autre part, nous avons analysé le passage du démonstrateur vers un réacteur incinérateur de puissance à partir de critères physiques tels que les facteurs de forme et les niveaux de flux. A partir de cette analyse, des solutions innovantes sont proposées pour améliorer les facteurs de forme d'un incinérateur de puissance.

Enfin, dans des perspectives à plus long terme, l'utilisation des réacteurs hybrides dans le cadre de la génération d' ^{233}U pour accélérer le démarrage d'une filière de réacteurs à sels fondus basée sur le cycle $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ a été explorée et s'avère particulièrement efficace.

TITLE

Optimization by simulation of the coupling between a sub-critical reactor and his spallation source. Towards a pilot reactor.

ABSTRACT

Accelerator Driven Systems (ADS), based on a proton accelerator and a sub-critical core coupled with a spallation target, offer advantages in order to reduce the nuclear waste radiotoxicity before repository closure. Many studies carried out on the ADS should lead to the definition of an experimental plan which would federate the different works in progress. This thesis deals with the neutronic Monte Carlo simulations with the MCNPX code to optimize such a system in view of a pilot reactor building. First, we have recalled the main neutronic properties of an hybrid reactor. The concept of gas-cooled eXperimental Accelerator Driven System (XADS) chosen for our investigations comes from the preliminary studies done by the Framatome company. In order to transmute minor actinides, we have considered the time evolution of the main fuels which could be reasonably used for the demonstration phases. The neutronic parameters of the reactor, concerning minor actinide transmutation, are reported. Also, we have calculated the characteristic times and the transmutation rates in the case of ^{99}Tc and ^{129}I isotopes. We have identified some neutronic differences between an experimental and a power ADS according to the infinite multiplication coefficient, the shape factor and the level of flux to extend the demonstrator concept. We have proposed geometric solutions to keep the radial shape factor of a power ADS acceptable. In the last part, beyond the experimental XADS scope, we have examined the possible transition towards an uranium/thorium cycle based on Molten Salt Reactors using a power ADS in order to generate the required ^{233}U proportion.

SPECIALITE

Physique des réacteurs, neutronique

MOTS-CLES

Optimisation, Réacteur sous-critique, Démonstrateur, Transmutation, Spallation, Neutronique, Actinides mineurs, Produits de fission

Thèse réalisée à l'Institut des Sciences Nucléaires, 53, avenue des martyrs, 38026 Grenoble CEDEX